# (ID)日本国時前庁 (JP) (I2) 公表特許公報(A)

(II)特許出願公表 4 号 特表 2000 - 507892 (P2000 - 507892 A)

(43)公表日 平成12年6月27日(2000.6.27)

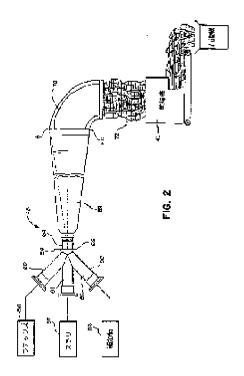
(51) Int.CL $^{\circ}$		識別而号	ΓΞ			デーマコー <b>、 (参考)</b>
<b>B2</b> 9B	15/04		B29B	15/04		
	7/30			7/30		
C 0 8 C	1/14		0080	1/14		
C 0 8 J	3/20	CEQ	C 0 8 J	3/20	CEQA	
C081	21/00		C08L	21/00		
			審查補承 未補求 予	庸審查請求 有	(全174頁)	最終頁に続く

(21)出 <b>夏番</b> 号	<b>特膜平</b> 9 - 535526	(71)出顧人 キャポット コーポレイション
(86) (22) 出 <b>限日</b>	平成9年3月25日(1997.3.25)	アメリカ <del>合衆国</del> 、マサチューセッツ
(85) <b>朝訳文提</b> 出日	平成10年10月 1 日 (1998, 10.1)	02109 1806, ポストン, ステイト スト
(86) 国際出願番号	PCT/US97/05276	0 J. 75
(87) 国際公開番号	WO97/36724	(72)発明者 チュン, ピン
(87)國際公開日	平成9年10月9日(1997, 10.9)	アメリカ合衆国、ニューハンプシャー
(31) 優先權主張番号	08/625, 163	08068, オシュア、ディアコン ドライブ
(3 <b>2) 接</b> 先日	平成8年4月1日(1996.4.1)	12
(33) 優先権主張国	米国〈US)	(72)発明者 マブリー、メリンダ エイ.
(31)優先權主張番号	60/020, 479	アメリカ合衆国。マサチューセッツ
(3 <b>2) 優</b> 先日	平成8年6月13日(1996.6.13)	02167。ニュートン、アルゴクィン ロー
(33)優先體主機国	米国(US)	F 65
		(74)代理人 弁理士 石田 敬 (外4名)
		最終頁に統

#### (54) 【発明の名称】 新規なエラストマー複合体、その製法および装置

#### (57) 【要約】

**混合ゾーンから凝固ゴムゾーンを通って反応装置の排出** 端部まで半拘束流の形の混合物を連続的に形成するべく 凝固ゴム反応装置の混合ゾーンに微粒子を充てん材とエ ラストマーラテックスの流体流が供給される、新しい連 統流方法及び集骨により、エラストマー複合体が製造さ れる。該微粒子光で心材流体は、排出端部に至る前に撤 粒子充てん材でエラストマーを実質的に完全に凝固する べく充分活発にエラストマーラテックス流体を巻込むた。 めジェットストリームを形成するような形で、混合ゾー ンに対し高圧下で供給される。酸又は塩溶液などに対す る爾里が関与する疑固段階を必要とせずに、効率の高い 有動なエラストマー機関が達成される。新規なエラスト マー複合体が製造される。かかる新規なエラストマー複 合体は、硬化させても又はさせなくてもよく、充てん材。 の選択、エラストマー、充て方材投入レベル及びマクロ 分数といったこれまで達成されたことのない材料特性を 組合わせるものである。



#### 【特許請求の範囲】

1. エラストマー複合体を製造する方法において;

混合ゾーンから排出端部まで延びる細長い凝固ゴムゾーンを構成する凝固 ゴム反応装置の該混合ゾーンに対し、エラストマーラテックスを含む第1の流体 の連続流を供給する段階;

エラストマーラチックスと混合物を形成するべく凝固ゴム反応装置の混合 ゾーンに対し加圧下で、微粒子充てん材を含む第2の流体の連続流を供給する段 階を含み、該混合物が排出端部まで連続流として移行し、微粒子充てん材がエラ ストマーラテックスを凝固させるのに有効であり、混合ゾーン内での該第1の流 体と該第2の流体の混合が、排出端部に至る前に微粒子充てん材でエラストマー ラチックスを実質的に完全に凝固させるのに充分をほご精力的なものであり;さ らに

ー 緩固ゴム反応装置の排出端部からエラストマー複合体の実質的連続流を排出する段階;

を含んで成る方法。

- 2. 第2の流体が、秒速100~800フィートでノズルを通して混合ゾーンに供給される、請求項目に記載のエラストマー複合体製造方法。
- 3. 第1の流体が、秒速**12**フォート未満で混合ゾーン内に連続的に供給される 請求項2に記載のエラストマー複合体製造方法。
- 4. エラストマーラチックスが天然ゴムラチックスであり、微粒子充てん材が カーボンブラックである請求項」に記載のエラストマー複合体製造方法。
- 5. 混合ゾーンに補助流体を供給する段階をさらに含んで成り、補助流体が混合物と実質的に反応性をもたない、請求項1に記載の

## エラストヤー複合体製造方法。

- 6. 補助流体が空気である請求項うに記載のエラストマー複合体製造方法。
- 7. 凝固ゴムゾーンが、混合ゾーンから排出端部への方向に漸進的に増大する 断面積を有する、請求項エに記載のエラストマー複合体製造方法。
  - 8. 微粒子充てん材がエラストマー中に分散したエラストマー複合体を調製す

#### る連続流方法において

- A) (1) 凝固ゴム反応装置の流入端部で混合ゾーンに対しエラストマーラテックス流体を連続的に供給すると同時に、
- (11) 混合ゾーン内に連続ジェットとして微粒子充てん材流体を供給することにより微粒子充てん材流体中にエラストマーラチックス流体を巻込むこと、によって、流入端部から排山端部まで漸進的に増大する断面積を伴って延びる上つの細長い凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置の中で加圧下で、混合されたエラストマーラテックスと微粒子充てん材の半拘束連続を樹立する段階;及び
- B) 段階A(i) 及びA(ii) に従った流体流の供給と同時にエラストマー複合体小球の実質的に一定の流量を凝固ゴム反応装置の排出端部から排出する段階:

を含んで成る方法。

- 9. エラストマーラチックスの凝固は、それが凝固さム反応装置の排血端部から排出されるにつれてエラストマー複合体小球の中で実質的に完全になる、請求 項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 10. 混合ゾーンと流動的連絡状態にある流入ポートを有するホモジナイザ内の 流体中の微粒子充てん材の高エネルギー分散により、

微粒子充てた材流体を調製する段階をさらに含んで成る、請求項8に記載の連続 流エラストマー複合体製造方法。

- 11. 液体エラストマーが、秒速100~800フィートでノズルを通じて混合ゾーン 内に供給される請求項 8 に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 12. ノズルを通る液体スラリーの速度が秒速200~500フィートである請求項11 に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 13. エラストマーラテックスを混合ゾーンに供給する前にエラストマー内に少量の添加物を予備混合する段階をさらに含んで成る、請求項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
  - 14. 微粒子充てん材流体が、水性カーボンブラック分散である請求項8に記載

- の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 15. 微粒子充てた材流体には、ケイ素処理されたカーボンブラック、ヒュームドシリカ、沈降シリカ及びそれらのいずれかの混合物が含まれる、請求項8に記載の連続流にラストマー複合体製造方法。
- 16. エラストマーラチックス流体が、基本的に天然ゴムラチックスで構成されている、請求項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 17. 天然ゴムラテックスが天然ゴムラテックス濃縮物である、請求項16に記載の連続流にラストマー複合体製造方法。
- 18. 天然ゴムラテックスがフィールドラテックスである請求項**16**に記載の連続 流エラストマー複合体製造方法。
- 19. エラストマーラチックス流体及び微粒子充てん材流体と同時に添加物流体 を別々に混合ゾーンに対し連続的に供給することによって、半拘束流の中に添加 物を混合する段階をさらに含んで成る、請求項8に記載の連続流エラストマー復 合体製造方法。
- 20. 添加物が、オゾン労化防止剤、酸化防止剤、可塑剤、加工助剤、樹脂、難燃剤、エキステンダ油、潤滑剤及びそれらのいずれかの混合物の中から選ばれる、請求項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 21. 加圧ガス混合ゾーン内に注入される段階をさらに含んで成る請求項8に記載の連続流ニラストマー複合体製造方法。
- 22. 加圧ガスが別々に混合ゾーン内に注入される請求項21に記載の連続流ニラストマー複合体製造方法。
- 23. 加圧ガスが、微粒子充てん材流体と合わせてノズルを通して混合ゾーン内 に注入される請求項21に記載の連続流にラストマー複合体製造方法。
- 24. 段階A(II)が、多重ノズルを通して連続的に混合ゾーンに微粒子充てん 材流体の多重流れを供給することを含んでいる、請求項8に記載の連続流エラス トマー複合体製造方法。
- **25**. 段階  $\Lambda$  (  $\Upsilon$  ) 及び  $\Lambda$  (  $\Pi$  ) と同時に、混合ゾーンに対し少なくとも1つのエラストマーラチックス流体の補助的流れを供給することをさらに含んで成る消

求項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。

- 26. 乾燥機を通じて、凝固ゴム反応装置の排出端部から受け取ったエラストマー複合体の小球を乾燥させる段階をさらに含んで成る、請求項8に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 27. 乾燥段階の後、エラストマー複合体を25~75ポンドの量だけ順次圧縮する ことによりエラストマー複合体をベールにする段階をさらに含んで成る請求項26 に記載の連続流エラストマー複合体製造方法。
- 28. エラストマーラデックス流体が10psig未満の圧力下で供給され、微粒子充 てん材流体が少なくとも75psigの圧力下で供給される

清求項8に記載の連続流ニラストマー複合体製造方法。

- 29. 天然ゴムラテックスをカーボンブラックで凝結させることによりゴムマスターバッチを製造する連続流方法において、
- A) (i)凝固ゴム反応装置の流入端準で混合ゾーンに対し連続的に天然ゴムラチックスの液体流を供給すると同時に;
- (ii) 液体スラリーを連続的ジェットとして混合ゾーン内に供給することによりカーボンブラックの液体スラリー内に連続して天然ゴムラチックスを巻込むこと;
- によって流入端部から開放排出端部まで漸進的に増大する断面積を伴って全体と して管状の凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置内で混合された天然ゴム ラチックスとカーボンブラックの半拘束連続流を樹立する段階:及び
- B) 同時に、凝固ゴム反応装置の排出端部からゴムマスターバッチ小球を封出 する段階、

を含んで成る方法。

- 30. 天然ゴム中に組かく分散したカーボンブラック、ケイ素処理されたカーボンブラック、ヒュームドシリカ、沈降シリカ及びそれらの混合物の中から選択された微量子充てん材を含んで成る、連続流エラストマー複合体製造力において、
- ー ホモジナイザ内での水性液体中の微粒子充てん材の高エネルギー分散により微粒子充てん材流体を調製する段階:及び

- (主)凝固ゴム反応装置の流入端部と密封された流動的連絡状態で混合へッドにより構成されかつ凝固ゴムゾーンと同軸的に延びている混合ゾーンに対し連続的に秒速10フィート未満で天然ゴムラチックスの液体流を供給すると同時に、
- (11) 凝固ゴムゾーンと実質的に同軸の供給管を通して凝固ゴムゾーンの流入 端部の方向で混合ゾーン内に微粒子充てん材流体を投

射することによって微粒子充てん材流体の中に連続的に天然ゴムラテックスを巻込む(ここで、微粒子充てん材流体は秒速200~500フィートで供給管から退出する)こと、

によって、流入端部から排出端部まで漸進的に増大する断面積を伴って全体と して管状の凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置内で、混合された天然ゴ ムラテックスと微粒子充てん材の半拘束連続流を樹立する段階;

微粒子充てん材による天然ゴムラテックスの凝固が実質的に完全であるマスターバッチ小球を凝固ゴム反応装置の排出端部から同時にかつ連続的に排出する段階;及び

少なくとも1つの乾燥機内で凝固ゴム反応装置から排出されたマスターバッチ小球を同時にかつ連続的に乾燥しペレット化する段階; を含んで成る方法。

31. 微粒子充てん材がエラストマー中に分散したエラストマー複合体を製造するための装置において、

混合ゾーン及び該ゾーンから排出端部まで延びる細長い凝固ゴムゾーンを 構成する凝固ゴム反応装置;

混合ゾーンに連続的にエラストマーラテックス流体を供給するためのラテックス供給手段:及び

エラストマーラテックス流体が混合ゾーンから凝固ゴムゾーンの排出端部まで進行している状態で1つの混合物を形成するべく混合ゾーン内に連続ジェットとして微粒子充て方材流体を供給するための充て方材供給手段を含んで成り、混合ゾーンと排出端部の間の距離が、排出端部に至る前のエラストマーラテック

スの実質的に完全な疑問を可能にするのに充分なものである装置。

32. 充てん材供給手段が、ノズルを通して混合ゾーンに対し秒速

100~600フィートで微粒子充てん材流体を連続的に供給するためのものである 、請求項31に記載のエラストマー複合体を製造するための装置。

- 33. ラテックス供給手段が、秒速8フィート未満で混合ゾーン内に連続的にエラストマーラテックス流体を供給するためのものである、請求項32に記載のエラストマー複合体製造装置。
- 34. 死でん材供給手段が、少なくとも丁平方インチ(ゲージ)あたり75ポンドの圧力下で混合ゾーンに連続的に微粒子充てん材流体を供給するためのものである、請求項31に記載のエラストマー複合体製造装置。
- 35. ラテックス供給手段が、1平方インチあたり12ポンド未満の圧力下で混合 ゾーン内に連続的にエラストマーラテックス流体を供給するためのものである、 請求項34に記載のエラストマー複合体製造装置。
- 36. 混合ゾーンに対し加圧流体の付加的流れを同時に供給するための補助供給手段をさらに含んで成る請求項31に記載のエラストマー複合体製造装置。
  - 37. 加圧流体が空気である、請求項36に記載のエラストマー複合体製造装置。
- 38. 凝固ばムゾーンが混合ゾーンと排出端部の間に漸進的に消失する断面積を 有している、請求項31に記載のエラストマー複合体製造装置。
- 39. 微粒子充てん材がエラストマー内に分散したエラストマー複合体の連続流 製造用装置において、

流入端部から排出端部に向かって漸進的に増大する断面積を伴って延びる 細長い凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置;

縁周ゴム反応装置の流入端部で混合ゾーンに連続的にエラス

トマーラテックス流体を供給するための手段:及び

排出端部に向かって凝固ゴムゾーン内の混合されたエラストマーラテック ス及び微粒子充てん材の半拘束流を作り出し、排出端部に至る前に微粒子充てん 材でのエラストマーラテックスの実質的凝固を達成するよう充分活発に混合ゾー ン内に微粒子充てん材流体を供給するための手段、 を含んで成る装置。

40. 微粒子充てん材がエラストマー中に分散したエラストマー複合体を製造するための装置において、

流入端部から排出端部まで漸進的に増大する断面積を伴って延びる細長い 凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置;

微粒子充てん材流体と共に混合物の中にエラストマーラチックス流体を巻込み、混合物が排出端部に倒着する前に微粒子充てん材でエラストマーラテックスを完全に凝固させるのに有効な圧力下で微粒子充てん材流体の連続ジェットを混合ゾーンに供給するための手段;

を含んで成る装置。

- 41. 混合ゾーンが混合ヘッド内にあり、細長い凝固ゴムゾーンと実質的に同軸である、請求項40に記載のエラストマー複合体の連続流製造用装置。
- 42. 混合ヘッドが凝固ゴムゾーンエキステンダに対し密封されている、請求項 41に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 43. 微粒子充てん材流体を供給するための手段が、凝固ゴムゾーンに向かって 開放したスラリーノズル先端部まで混合ゾーンと実質的に同軸的に延びる第1の 供給管を含んでいる請求項42に記載のエ

ラストマー複合体連続流製造用装置。

44. 混合ヘッドが、流入ポートから凝固ゴムゾーンに向かって延びる凝固 ゴムゾーンと実質的に同軸の第1の供給流路を形成し;

第1の供給流路内で同種的に延びている第1の供給管が流入ボートにおいて混合へッドと流入密封シールを形成する;

請求項43に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。

45. 第1の供給管が流入ポートからスラリーノズル先端部まで延び、スラリー ノズル先端部のすぐ上流にある第1の供給管内の一定直径のランドがその直径の 少なくども3倍の軸方向寸法を有している、請求項44に記載のエラストマー複合 体連続流製造用装置。

- 46. エラストマーラテックス流体を供給するための手段には、混合ゾーンから離れた第2の流入ボートから混合ゾーンとの接合部まで延びる、第1の供給流路に対し30°~90°の角度で混合ヘッドにより形成された第2の供給流路が含まれている請求項44に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 47. 混合ゾーンの直ぐ下流の凝固ゴムゾーンの断面積が第1の供給管の断面積の2倍以上である請求項45に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- **48**. 混合ゾーンの直ぐ下流の凝固ゴムゾーンの断面積が、第1の供給管の断面積の約4~8倍である請求項47に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 49. 混合ヘッドが、混合ゾーンから離れた流入ポートから混合ゾーンとの接合部まで延びる、第1の供給流路に対し30°~90°の角度を成す少なくとも1つの付加的供給流路を形成している、請求項45に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
  - 50. 流入端部から排出端部まで延びる凝固ゴムゾーンの少なくと

も第1の部分が、円形断面と中心長手方向軸を有し、該円形断面は、中心長手方向軸に対し0度以上25度未満の全体的角度を成してサイズを増大していく、請求項40に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。

- 51. 凝固ゴムゾーンの断面積が、排出端部に向かって連続的に増大する、請求 項40に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 52. 凝固ゴムゾーンの断面積が、流入端部から排口端部に向かって段階的に増 大する、請求項50に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
  - 53. 凝固ばムゾーンの前記第1の部分が、

実質的に一定の直径 $D_1$ をもち、流入端部から排出端部まで、 $D_1$ の少なく とも3倍である長さ $I_1$ だけ延びる第1の区分:及び

直前の区分の断面積の少なくとも2倍の実質的に一定の断面積及びその断面直径の少なくとも3倍の長さを各々有している多数の付加的区分; を含んでいる、請求項51に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。

- **54.** 第1の区分の長さ1.1がその直径D1の約**12~18**倍である、請求項**53**に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 55. 流入端部から排出端部まで延びる凝固ごムゾーンが、円形断面を有し、排出端部に向かって段階的にサイズを増大し、しかも

ノズルの断面直径の $5\sim8$  倍に等しい実質的に一定の断面直径 $D_1$ 、断面積 $\Lambda_1$  及び $D_1$ の $12\sim18$ 倍の長さ $L_1$ を有する流入端部で始まる第Lの区分;

実質的に一定の断面直径 $D_2$ ,  $A_1$ の約2倍の断面積 $A_2$ 及び $D_2$ の約3~7倍の長さ $L_2$ を有する、第1の区分に対して形を

揃えた連結部分から排車端部に向かって延びる第2の区分、

実質的に一定の断面直径 D3、A2の約2倍の断面積A3、及び D3の約3~7倍の長さ1.3を有する、第2の区分に対して形を揃えた連結部分から排出端部に向かって延びる第3の区分:及び

実質的に一定の断面直径D4, A3の約2倍の断面積A4、及びD4の約3~ 7倍の長さL4を有する、第3の区分に対して形を揃えた連結部分から排出端部 に向かって延びる第4の区分;

を有する、請求項54に記載のエラストマー複合体連続流製造用裝置。

- 56. 凝固ばムゾーンの排出端部からエラストマー複合体を収容しこれを多重収容部位のいずれかまで選択的に通過させるためのダイバータをさらに含んで成る 請求項40に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 57. ダイバータには、凝固ゴム反応装置の排出端部に取付けられた第1の端部と多重収容部位のいずれかまで移動可能な第2の端部を有する可とう性導管が含まれている請求項56に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。
- 58. 微粒子充てた材流体を供給するための手段には、75psigよりも大きい前記 圧力を発生させるための圧送手段が含まれ、エラストマーラデックス流体を供給 するための手段には、10psig未満のエラストマーラデックス流体圧力を発生させ るための保持用タンク及び供給ラインが含まれている、請求項56に記載のエラス トマー複合体連続流製造用装置。
  - 59. 微粒子充てん材流体が、担体液の中にカーボンブラックを含むカーボンブ

ラックスラリーであり、該流体を混合ゾーンに供給するための手段と流動的連絡 状態にあるカーボンブラックスラリー調製手段をさらに含み、

混合物流体を排出するための排出ボートを有する、カーボンブラックとキャリヤ液の撹拌混合物のための混合用タンク;

混合用タンクの排出ボートと流動的連絡状態にある取入れボート及び分散 流体を排出するための出口ボートを有する、分散流体を形成するべくキャリヤ液 中にカーボンブラックを分散させるためのコロイドミル;及び

コロイドミルの排出ボートと流動的連絡状態にある人口ボート及び、混合 ブーンに対し微粒子充てん材流体を供給するための手段までカーボンブラックス ラリーを移送するための流出ボートを有する、カーボンブラックスラリーを形成 するべくキャリヤ液中にカーボンブラックをより細かく分散するためのホモジナイザ:

を含んで成る情求項40に記載のエラストマー複合体連続流製造用装置。

- 60. 微粒子充てん材が、
- 混合ゾーンから排出端部まで延びる細長い凝固ゴムゾーンを構成する凝固 ゴム反応装置の該混合ゾーンに対し、エラストマーラテックスを含む第1の流体 の連続流を供給すること;

エラストマーラテックスと混合物を形成するべく凝固ゴム反応装置の混合 ゾーンに対し加圧下で、微粒子充てん材を含む第2の流体の連続流を供給するこ と(ここで該混合物は排出端部まで連続流として移行し、微粒子充てん材はエラ ストマーラテックスを凝固させるのに有効であり、混合ゾーン内での該第1の流 体と該第2の流体の混合は、排出端部に至る前に微粒子充てん材でエラストマー ラテックスを実質的に完全に凝固させるのに充分なほご活発なものである):及 が

凝固ゴム反応装置の排出端部からエラストマー複合体の実質的連続流を排出すること;

によって分散させられた、エラストマーを含むエラストマー複合体。

- **61**. A) (1)凝固式A反応装置の流入端部で混合ゾーンに対しエラストマーラテックス流体を連続的に供給すると同時に、
- (11)混合ゾーン内に連続ジェットとして微粒子充てん材流体を供給することにより微粒子充てん材流体中にエラストマーラテックス流体を巻込むこと、によって、流入端部から排出端部まで漸進的に増大する断面積を伴って延びる上つの細長い凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置の中で加圧下で、混合されたエラストマーラテックスと微粒子充てん材の半拘束連続流を樹立する段階;及び
- B) 段階A(I) 及びA(II) に従った流体の流れの供給と同時にエラストマーマスターバッチ小球の実質的に一定の流量を凝固ゴム反応装置の排出端部から 排出する段階;

を含む連続流方法によって形成される、エラストマー中に細かく分散した微粒子 充てん材を含んで成るエラストマー複合体。

- **62.** A)(1)凝固ゴム反応装置の流入端部で混合ゾーンに対し連続的に天然ゴムラテックスの液体流を供給すると同時に、
- (11)液体スラリーを連続ジェットとして混合ソーン内に供給することにより カーボンブラックの液体スラリー内に連続して天然ゴムラテックスを巻込むこと 、

によって、流入端部から開放排出端部まで漸進的に消大する断面積を伴って全体 として管状の疑問ゴムブーンを形成する疑問ゴム反応装置内で混合された天然ゴ ムラチックスとカーボンブラックの半拘束連続流を樹立する段階:及び

B) 同時に、凝固ゴム反応装置の排出端部からエラストマー複合体小球を排出 する段階、

を含んで成る連続流方法によって形成されるエラストマー複合体。

- **63**、 ホモジナイザ内での水性液体中の微粒子充てん材の高エネルギー分散 により微粒子充てん材流体を調製する段階:及び
- ー (主)凝固ゴムゾーンエキステンダと密封されて流動的連絡状態で混合へ ッドにより構成されかつ凝固ゴムゾーンと同軸的に延びている混合ゾーンに対し

連続的に秒速10フィート未満で天然ゴムラチックスの液体の流れを供給するのと 同時に、

(ii) 凝固ゴムゾーンと実質的に同軸の供給管を通して混合ゾーン内に微粒子充てん材流体を供給することによって微粒子充てん材流体の中に連続的に天然ゴムラチックスを巻込む(ここで微粒子充てん材流体は秒速200~500フィートで供給管から退出する)ことによって、混合ゾーン及び該混合ゾーンから排出端部まで漸進的に増大する断面積を伴って全体として管状の凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装置内で混合された天然ゴムラチックスと微粒子充てん材の半拘束連続流を樹立する段階;

微粒子充てん材による天然ゴムラチックスの凝固が実質的に完全であるエラストマー複合体の小粒を凝固ゴム反応装置の排出端部から同時にかつ連続的に 排出する段階:及び

ー 緩固ゴム反応装置から排出された小球を同時にかつ連続的に乾燥してペレット化する段階;

を含んで成る連続流方法により形成されたエラストマー複合体。

- 64. エラストマー中に分散した微粒子充てん材を含むエラストマー複合体において、エラストマー複合体中の微粒子充てん材のマクロ分散D(%)が、0.2% 未満の未分散面積である、エラストマー複合体。
- 65. 微粒子充てん材がカーボンプラック、ヒュームドシリカ、ケイ素コーティングされたカーボンブラック、ケイ素処理されたカー

ボンブラック、ヒュームドシリカ、沈降シリカ又はそれらのいずれかの混合物である、清求項64に記載のエラストマー複合体。

- 66. エラストマーが天然ゴム、天然ゴムの塩素化誘導体又は、ブタジエン、スチンン、イソプレン、イソプチレン、アルキル基がC1~C3アルキルである3、3 ジアルキル 1、3 プタジエン、アクリロニトリル、エチンン又はプロピレンの単独垂合体、共重合体又は三成分共重合体である、請求項64に記載のエラストマー複合体。
  - 67. エラストマー中に分散した少なくとも30phrの微粒子充てん材を含むエラ

ストマー複合体において、微粒子充てん材がカーボンブラック、ケイ素コーティングされたカーボンブラック、シリコン処理されたカーボンブラック、ヒュームドシリカ、沈降シリカ又はそれらのいずれかの混合物の中から選択され、エラストマーが、天然ゴム、ブタジエン、ステレン、イソプレン、イソプチンン、アルキル基がC1~C3アルキルである3、3 ジアルキル 1、3 ブタジエン、アクリロニトリル、エチレン又はプロビレンの単独重合体、共重合体又は三成分重合体の中から選択され、エラストマー複合体中の微粒子充てん材のマクロ分数D(%)が0.2%未満の未分散面積である、エラストマー複合体。

- **68.** オゾン労化防止剤、酸化防止剤、可塑剤、加工助剤、機脂、難燃剤、エキステンダオイル、潤滑剤及びそれらのいずれかの混合物の中から選ばれる少なく とも1つの添加物をさらに含んで成る、請求項**67**に記載のエラストマー複合体。
- 69. マクロ分散D(%)が0.1%未満の未分散面積である請求項67に記載のエーラストマー複合体。
- 70. 0.3%以下のマクロ分散 D (%) を有する、ストラクチャーと表面積の 比DBPA:CTABが1.2未満の30~75phrのカーボンブラッ

クと天然ゴムを含んで成るエラストマー複合体。

- 71. カーボンブラックのストラクチャーと表面積の比DBPA:CTABが1.0未満である、請求項70に記載のエラストマー複合体。
- 72. 天然だム中に分散したカーボンブラックを含んで成るエラストマー複合体において、エラストマー複合体中のカーボンブラックのマクロ分散 D (%) が0. 2%未満の未分散面積であるエラストマー複合体。
- 73. 10ミクロン以上の大きさの欠陥についての未分散面積の百分率として測定されるエラストマー複合体中のカーボンブラックのマクロ分散D(%)が0.1%未満である、請求項72に記載のエラストマー複合体。
- 74. エラストマー複合体が未加備であり、エラストマー複合体のMMs。」(重量 平均)が少なくとも0.45×10°である、清水項72に記載のエラストマー複合体。
- 75. カーボンブラックの表面積CTABが45より大きい、清求項72に記載のエラストマー複合体。

- 76. エラストマー複合体が少なくとも30phrのカーボンブラックを含んで成る 請求項72に記載のエラストマー複合体。
- 77. 0~20phrのエキステンダ油をさらに含んで成る、請求項72に記載のエラストマー複合体。
- 78. 天然ゴムの中に分散したカーボンブラックを含むエラストマー複合体において、カーボンブラックか図 8 の領域 L の構造及び表面積特性を有し、図10中のライン101より下の面積内のMB。 成びマクロ分散 D (%) を有するエラストマー複合体。
- 79. 天然ゴムの中に分散したカーボンブラックを含むエラストマー複合体において、カーボンブラックが図8の領域日のストラクチャー及び表面積特性を有し、図目のライン目はり下の面積内のMMs。

r及びマクロ分散D(%)を有するエラストマー複合体。

- 80. 天然ゴムの中に分散したカーボンブラックを含むエラストマー複合体において、カーボンブラックが図8の領域111のストラクチャー及び表面積特性を有し、図12中のライン121より下の面積内のMMs at 及びマクロ分散D(%)を有するエラストマー複合体。
- 81. 天然は $\Delta$ 45から250未満までのCTAB表面積をもつ30~75phrのカーボンブラック及び0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i)MWser≤0.45×10回のごき、D(物)≦0.2%
  - (ii) 0.45×1001 < MWs or < 1.1×100のとき、

 $log(D) \le log(0, 2) - 2.0 \times (MW_{5.0.1} - 0.45 \times 10^6) \times 10^{-6}$ 

といったような、天然ゴム中のカーボンプラックのマクロ分散D(%)を有する エラストマー複合体。

- **82.** 天然ゴム、45~250のCTAB表面積及びCTABが65以上250未満である場合に11 0未満のDBPA(cc/100g)そしてCTABが45から65未満である場合に80ー1.6(CTAB
- 45)未満のDBPAのストラクチャーをもつ30~75phrのカーボンブラック、及び () ~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i) MWs at が0.7×106 未満であるとき、D(%)<1.0%、

- (ii) 0.7×10<sup>6</sup> 1 < MMs at < 1.1×10<sup>6</sup> であるとき、
- $\log$  (D)  $\leq \log 1.0 2.5 \times$  (MWs  $_{ext}$  0.7 $\times$ 10 $^{\circ}$ )  $\times$ 10 $^{\circ}$ 0  $\times$ 10 $^{\circ}$ 0  $\times$ 10 $^{\circ}$ 0  $\times$ 10 $^{\circ}$ 1  $\times$ 10 $^{\circ}$ 2  $\times$ 10 $\times$ 10  $\times$ 10 $\times$ 10  $\times$ 10 $\times$ 10  $\times$ 10 $\times$ 10  $\times$ 10
- 83. 天然ゴL、110から80ー1.6(CTAB 45)未満までのDBPAストラクチャー及び65以上250未満のCTAB表面積を有する30~70phrのカーボンブラック及び、0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (主)MNs o i が0.35×10 未満であるとき、D<0.3%、
  - (ii) 0.35×100<MWser<1.1×100であるとき、
- $\log$  (D)  $< \log \times (0.3) 2.8 (MWs or <math>-0.35 \times 10^6$ )  $\times 10 6$ という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散D(%)を有するエラストマー複合体。
- 84. 天然ゴム、及び80-1.6(CTAB 45)から160までのDBPAストラクチャー(cc /100g) 及び45以上90未満のCTAB表面積を有する40~70phrのカーボンブラック及び、0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i)MMs a r が0.35×109未満であるとき、D(%)<0.1%、
  - (ii)0.3×10 < MWs o₁ < 1.1×10 であるとき、
- log ( D )  $< log(0,1) + 2.0 \times$  ( $MW_{\rm sol} = 0.30 \times 10^6$  )  $\times 10^{-6}$  という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散り(%)を有するエラストマー複合体。
- 85. 天然 ゴム、3C~70phr の STBRLING® 6740カーボンプラック及 び0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (主) MMs of が0.3×106 未満であるとき、D(多)≦0.1%
  - (ii) 0.3×10 < MWs a < 1.1×10 であるとき、
- $\log (10) < \log (0.1) 2.0 \times (MMs_{\odot 1} 0.3 \times 10^{6}) \times 10^{-6}$ という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散り(%)を有するエラストマ 一複合体。
  - 86. 天然ゴム、30~70phrのN234カーボンブラック及び()~20phrのエキステン

ダ油を含むエラストヤー複合体において、

- (i) MNs atが0.35×100未満であるとき、D(%)<0.3%
- (ii) 0.35×10 < MWs or < 1.1×10 であるとき、
- $\log (D) < \log(0.3) 2.8 \times (MW_{sol} 0.35 \times 10^6) \times 10^{-6}$

という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散D(%)を有するエラストマー複合体。

- 87. 天然ゴム、30~70phrのN110カーボンブラック及び()~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i)MMs arが0.35×106末満であるとき、D (乳) <0.5%
  - (ji) 0.35×106<MMs o j <1.1×106であるとき、

| log (D) < log(0.5) = 2.5× (MWs or 0.35×10°) × 10°° という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散D (%) を有するエラストマ 一複合体。

- 88. 天然ゴム、30~70phrのN326カーポンプラック及び()~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i) MMs ar (重量平均)が0.7×106末満であるとき、D (%) <1.0%
  - (ii) 0.7×10<sup>6</sup><MWs e1<1.1×10<sup>6</sup>であるとき、

 $\log (D) < \log(1.0) - 2.5 \times (MWs or 0.7 \times 10^4) \times 10^{-6}$ という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散り(%)を有するエラストマー複合体。

- 89. 天然 ゴム、30~70phr の BLACK PEARL® 800カーボンブラック及び0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (主) MRs at が0.65×100 未満であるとき、D(%)<1.5%
  - (ii) 0.65×100<MWsor<1.1×100であるとき、

 $\log$  (D)  $< \log(1, 5) + 2$ 、 $5 \times (MWs o) + 0.65 \times 10^6$   $\times 10^{-6}$  という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散D (%) を有するエラストマー複合体。

90. 天然ゴム、30~70phr の REGAL® 660カーボンブラック及び

- 0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i) MMs at が0.6×106 未満であるとき、D(%)<1.0%
  - (ii) 0.6×104<MWs ar < 1.1×104であるとき、

- 91. 天然ゴム、30~70ph の RBCAL® 250カーボンプラック及び 0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i)MWs ar が0.6×100 未満であるとき、D(%)<1.0%
  - (ji) 0.6×10 < MWs or < 1.1×10 であるとき、

log (D) <log(1.0)−2.5× (MWsor 0.6×10°) ×10-6 という天然ゴム中のカーボンプラックのマクロ分散D (%) を有するエラストマ 一複合体。

- 92. 天然ゴム、30~70phrのN330カーボンブラック及び()~20phrのエキステン ダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (i) MWs at が0.6×106未満であるとき、D (%) <1.0%
  - (ii) 0.6×10 < MWs or < 1.1×10 であるとき、

 $log(D) < log(1.0) + 2.5 \times (MNsor = 0.6 \times 10^6) \times 10^{-6}$ という天然ばム中のカーボンブラックのマクロ分散り(%)を有するエラストマ 一複合体。

- 93. 天然ゴム、30~70phrのN351カーボンブラック及び () ~20phrのエキステン ダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (主) MRs at が0.55×100 未満であるとき、D(%)<0.3%
  - (ii) 0.55×100<MWsor<1.1×100であるとき、

 $\log$  (D)  $< \log(0.3) - 2.0 \times (MMs \circ 1 - 0.55 \times 10^6) \times 10^{-6}$ という天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散D(%)を有するエラストマ 一複合体。

94. 天然ゴム、カーボンブラックとシリカの配合物を含む30~70

phrの微粒子充てん材及び 0~20phrのエキステンダ油を含むエラストマー複合体 において、

- (i) MMs at が0.5×100 未満であるとき、D (%) <0.8%
- (ii) 0.5×10<sup>6</sup> < MWs or < 1.1×10<sup>6</sup> であるとき、

 $\log (D) < \log(0.8) - 2.2 \times (MW_{sol} - 0.5 \times 10^6) \times 10^{-6}$ 

という天然ゴム中の微粒子重合体のマクロ分散D(%)を有するエラストマー複合体。

- 95. 微粒子充てん材が少なくとも約60%のカーボンブラックを含んで成る、請求項94に記載のエラストマー複合体。
- 96. 天然ゴム、30~70phrのケイ素処理されたカーボンブラック及び ()~20phr のエキステンダ油を含むエラストマー複合体において、
  - (主)MBs a」が0.4×100 未満であるとき、D(%)<1.0%
  - (ii) 0.4×104<MWs at < 1.1×104であるとき、

 $\log (D) < \log(1.0) - 2.0 \times (MW_{sol} - 0.4 \times 10^6) \times 10^{-6}$ 

という天然ゴム中のケイ素処理されたカーボンブラックのマクロ分散 D (%)を 有するエラストマー複合体。

- 97. 天然ゴム中に分散したカーボンブラックを含む加硫ゴムにおいて、エラストマー複合体中のカーボンブラックのマクロ分散D(%)が0.2%未満である加 流ばム。
- 98. エラストマー複合体中のカーボンブラックのマクロ分散 D (%) が0.1% 未満である、請求項97に記載の加硫ゴム。
  - 99. 請求項60~98のいずれか工項に記載の硬化エラストマー複合体。
  - 100. 請求項99に記載の硬化エラストマー複合体を含むタイヤトレッド。
  - 101. 清求項99に記載の硬化エラストマー複合体を含むタイヤサブ

## トレッド。

- 102. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含むタイヤ川のワイヤスキム。
- 103. 清求項99に記載のエラストマー複合体を含むタイヤサイドウォール。

- 104. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含む更生タイヤ用クッションゴム。
- 105. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含むエンジンマウントのゴム部 品。
  - 106. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含むタンクトラック。
  - 107. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含む採鉱ベルト。
- 108. 清水項99に記載のエラストマー複合体を含むハイドロマウントのゴム部品。
  - 109. 請求項99に記載のエラストマー複合体を含むブリッジ軸受。
  - 110. 請求項99に記載のエラストヤー複合体を含む地震免脹装置。
- 111. ASTM D3629 94に従って測定した角製生長速度が、1.20cm/100万サイクルである請求項60~98のいずれか1項に記載の硬化エラストマー複合体。
- 112. ASTM D3629 94に従って測定した角製生長速度が、1.20cm/100万サイクルである加硫ざム。
- 113. 混合ゾーンから排出端部まで延びる細長い凝固ゴムゾーンを構成する凝固ゴム反応装置の該混合ゾーンに対し、エラストマーラテックスを含む第1の流体流を供給する段階;

エラストマーラテックスと混合物を形成するべく凝固ゴム反応装置の混合 ゾーンに対し加圧下で、微粒子充てん材を含む第2の流体流を供給する段階:

を含み、該混合物が排出端部まで微粒子充てん材がエラストマーラテックスを凝固させるのに有効であり、混合ゾーン内での該第1の流体と該第2の流体の混合が、排出端部に至る前に微粒子充てん材でエラストマーラテックスを実質的に完全に凝固させるのに充分をほど活発をものであり、さらに

凝固ゴム反応装置の排出端部からエラストマー複合体流を排出する段階: を含んで成る、エラストマー複合体製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

新規なエラストマー複合体、<u>その製法および装置</u>

# 技術分野

本発明は、エラストマー複合体を製造するための新規な方法及び装置、ならび にかかる方法及び装置を用いて製造された新規なエラストマー複合体に関する。 より詳細には、本発明は、エラストマー内に細かく分散された微粒子充てん材の エラストマーマスターバッチ、例えば硬化剤を含まないマスターバッチ組成物、 硬化剤を帯びたベース組成物といった、天然ゴム中に細かく分散したカーボンブ ラック微粒子充てん材のエラストマー複合体を製造するための連結流方法及び装 置及びかかるマスターバッチ組成物で形成されたゴム材料及び製品に関する。

# 背景技術

微粒子充てん材がさまざまな合成エラストマー、天然ゴム又はエラストマー配合物のいずれかの中に分散されているエラストマー組成物から、商業的な価値のある数多くの製品が形成されている。例えば、カーボンブラックは、天然ゴム及びその他のエラストマーの中で補強剤として広く用いられている。マスターバッチ、すなわち充てん材、エラストマー及びエキステンダ油といったさまざまな任意の添加物の予備混合物を製造することが一般的になっている。カーボンブラックマスターバッチは、単位重量あたりの表面積と同時に「ストラクチャー」の面でも変動する市販のさまざまなグレードのカーボンブラックを用いて調製される。商業的に意義ある数多く

の製品が、天然ゴム中に分散したカーボンブラックの微粒子充てん材のかかるエラストマー組成物で形成されている。かかる製品には、例えば、トレッド部分、サイドウォール、ワイヤスキム及びカーカスのために異なるエラストマー組成物が使用できる車両タイヤが含まれる。その他の製品としては、例えば、エンジンマウントブッシング、コンベヤベルト、ワイバーなどがある。現在利用可能な材料及び製造技術を利用して広範な性能特性を達成することが可能であるものの、業界では、改良された特性をもつエラストマー組成物を開発し現行の製造技術のコスト及び複雑性を低減させる必要性が良い間存在し続けている。特に、例えば

、マクロ分散レベル、すなわちエラストマー内のカーボンブラック又はその他の充てん材の分散の均等性が性能特性に著しく影響を及ぼし得ることがわかっている。カーボンブラック又はその他の充てん材を天然ゴム又はその他のエラストマーと(例えばバンブリーミキサーなどの中で)強く混合することによって調製されるエラストマー組成物にとっては、マクロ分散を増大させるために、より長時間の又はより強い混合が必要となり、その結果、エネルギーコスト、製造時間及びそれに類する不都合がもたらされる。表面積及びストラクチャー上の或る種の特性をもつカーボンブラック充てん材については、一定の度合を超える分散は、既知の混合装置及び技術を用いた場合不可能又は商業的に実施不能であった。さらに、このような長時間の又はより強力な混合は、その分子量を減少させることによって天然ゴムを劣化させ、仕上ったエラストマー化合物を或る種の利用分野にとって望ましくないものにしてしまう。

エラストマー組成物の性能特性を操作する目的で、より大きいか又はより小さいストラクチャー又は表面積をもつカーボンブラックを利用するというのは周知のことである。より大きい表面積及びよ

り小さいストラクチャーをもつカーボンブラックが亀裂生長耐性及びカット&チップ強度ならびに、一般的に摩耗抵抗及びその他の性能特性を改善するものであることがわかっている。しかしながら商業的に利用可能な混合技術は、天然ゴムを受容できないほどに労化させることなくエラストマー全体を通してのカーボンブラックのすぐれた分散均等性を達成することができなかった。実際、45phr~75phrといった天然ゴム中の標準的カーボンブラック投入レベル及び0phr~10phrといったオイル投入レベル、110cc/100g未満のDBPAのカーボンブラック、特に約45m²/g~65m²/g以上の表面積(CTAB)をもつカーボンブラックといった低ストラクチャーカーボンブラックについては、持続時間及び強度レベルとは無関係に、約1%未満の未分散カーボンブラック(以下に記述するとおりマクロ分散として測定されるもの)を有する化合物を達成することは不可能であった。その上、上述のとおり、現在広く商業的に用いられているエネルギ消費量がきわめて高い動力な乾式混合方法では、かかるカーボンブラックを分散させるのに必要

なエラストマーの素練りの結果、天然ゴムエラストマーの重合体鎖の破断レベルが、受容できないほどになる。その結果得られる天然ゴムの分子量減少は、数多くの産業的利用分野にとって望ましくないものである。例えばタイヤトレッド内での使用にあたっては、分子量の低下によって、タイヤのいわゆる転がり抵抗の望ましくない増大がひき起こされることがわかっている。

さらに、理論的な分析からは、より大きい表面及びより小さいストラクチャーをもつカーボンブラックを用いたエラストマー組成物の或る種の性能特性の望ましい改善が示されているものの、既知の物理的ミリング又はその他の素練りプロセスを用いて、天然ゴムの分子量が充分に保存されると同時にカーボンブラックの満足のいく

マクロ分散レベルが達成されているようなエラストマー組成物を得ることは不可能であった。一般に、例えば、カーボンブラックのエラストマー組強特性がカーボンブラックの粒度の減少に伴って増大することが発見されてきた。しかしながら、極めて細かいカーボンブラックは、予想された物性の改善が達成されない異常な条件に遭遇することがわかっている。これは、少なくとも一部には、従来のエラストマー配合方法がエラストマー重合体を不適当に破断させることなく天然ゴム中にカーボンブラックを適切に分散させることができないことに原因があると考えられている。従って、このようなカーボンブラックの場合は、結果的にカーボンブラックと天然ゴム間の相互の自然の親和力を充分に活用することができなかった。

天然ゴム化合物内のカーボンブラックの優れた分散は、一時期、良質で一貫性のある製品性能を達成するための最も重要な目的の工つと認識されていたため、ゴム中の分散の質を評価するための手順の開発に多大な努力が傾注されてきた。開発された方法としては、例えば、カボット分散図及びさまざまな可像解析手順が含まれる。分散の質は、達成された混合状態として定義づけることができる。カーボンブラックの理想的な分散は、カーボンブラックの集塊(又はベレット)が(分散型混合により達成されるように)凝集体に分解され、(分配型混合によって達成されるように)互いから均等に分離され、このとき全てのカーボンブラ

ック凝集体の表面はゴムマトリクスにより完全に浸潤化されている(通常取り込みと呼ばれる)ような状態である。

貧弱なマクロ分散に往々に関係づけされるゴム業界の一般的な問題点は、次の オつの主要なカテゴリに分類できる:すなわち、製品性能、表面欠陥、外観及び 分散効率である。引張り強さ、疲労寿命及び摩耗抵抗といったカーボンブラック 含有ゴム製剤の機能的性能

及び耐久性は、マクロ分散の質により実質的に影響される。未分散カーボンブラックは同様に、可視的欠陥を含めて、完成した製品上に表面欠陥をひき起こす可能性がある。表面欠陥の存在を除去することは、薄い成形部品では機能上の理由により、又押出し成形された形材においては美観上及び機能上の両方の理由から非常に重要である。

Kontron Electronik GmbH (ドイツ、ミュンペン)から大手可能なIBAS Compact型画像解析装置といった市販の画像解析装置を用いて、カーボンブラック又はその他の充てん材のマクロ分散を測定することができる。一般にゴム産業において用いられる定量的マクロ分散テストにおいて、臨界的カットオフサイズは10ミクロンである。サイズが約10ミクロンより大きい欠陥は、標準的に、未分散カーボンプラック又はその他の充てん材ならびに、視覚的及び機能的の両方の性能に影響を及ぼしうるあらゆる粗粒子又はその他の汚染物質で構成されている。かくして、マクロ分散の測定には、画像解析手順を用いて検査された単位面積あたりのかかる欠陥の合計面積によって、サイズが10ミクロンより大きい(ミクロトーム、押出し又はカッティングにより生成された)表面上の欠陥を測定することが関与している。マクロ分散り(%)は、以下の通りに計算される。

未分散面積% (%) = 
$$\frac{1}{Am} \sum_{i=1}^{n} \frac{\Pi D i^2}{4}$$

なお式中、Am三検査された標本合計表面積。

NiーサイズDiの欠陥の数

Diー欠陥の面積と同じ面積をもつ円の直径(等価円半径)

m=画像の数。

未硬化天然ゴム又はその他の適切なエラストマーの中のカーボンブラック又は その他の充てん材のマクロ分散は、カットされた表面

標本の画像解析を用いて評価できる。標準的には、画像解析のためカット表面の 任意に選択された光学画像が5~10個とられる。数値的ろ過投術を用いて、好ま しくは、ナイフの傷などが除去される。かくしてカット表面解析は、天然ゴム化 合物内部のカーボンブラック分散の質に関する情報を提供する。特定的には、末 分散面積の百分率(%)が、カーボンブラックのマクロ分散の質を表わす。マク 口分散の質が劣化するにつれて、未分散面積の百分率は増入する。従って、未分 散面積の百分率を減少させることによって、分散の質を改善することができる。 上述の通り、湿合作業は、混合効率及びマクロ分散に対し直接的な影響を有する 。一般は、混合時間を長くし、混合をより強いものにすることによって、エラス トマー、例えば天然ゴムマスターバッチ内により良いカーボンブラックマクロ分 散が達成される。しかしながら残念なことに、より長くより強力な混合によりさ らに優れたマクロ分散を達成すると、カーボンブラックが分散させられているエ ラストマーは劣化する。このことは、機械的/熱的劣化をきわめて受けやすい天 然ゴムの場合は特に問題が大きい。バンブリーミキサーといった既知の混合技術 及び装置を使用したより長時間でより強力な混合は、ゴムマスターバッチ組成物 の分子量を減少させる。かくして、天然ゴム中のカーボンブラックのマクロ分散 の改善は、それに対応してゴムの分子量が一般に望ましくないほどに減少してい く状態で達成されることがわかっている。

乾式混合技術に加えて、撹拌された凝固タンクに連続的にラテックス及びカーボンブラックスラリを供給することが知られている。このような「湿式」投資は 般に、SBRといったような合成エラストマーと共に用いられる。凝固タンクは 、標準的に約2.5~4のpHをもつ塩又は水性又は酸性溶液といった凝固部を含ん でいる。ラテ

ックス及びカーボンブラックスラリは、湿潤クラムと呼ばれる小さなビーズの形 になるよう、凝固タンク内で混合、凝固される。クラムと酸排液は、標準的には 、振動式揺動ふるいなどを用いて分離される。次にクラムは、撹拌された第2の タンク内に投下され、ここで洗浄されて中性又は近中性研を達成する。その後ク ラムは、付加的な振動ふるい及び乾燥段階などを受ける。この方法に対する変形 形態が、天然及び合成エラストマーの凝固について提案されてきた。本発明と同 様にCabot Corporationに譲渡されるHagopian等。に対する米国特許第4,029,633 星においては、エラストマーマスターバッチの調製のための連続的プロセスが記 述されている。カーボンブラックの水性スラリが調製され、天然又は合成エラス トマーラテックスと混合される。この混合物は、任意にさまざまな既知のクリー ミング剤のいずれかを用いるいわゆるクリーミング作業を受ける。カーボンブラ ラク/ラテックス混合物のクリーミングに続いて、これは凝固段階に付される。 特定的に言うと、クリーミングされたカーボンブラック/ラテックス混合物は、 単一の凝集性の流れとして凝固液の流れのコアの中へと導かれる。クリーミング されたカーボンブラック/ラテックス混合物の固体流は、凝固に先立ち凝固液の 流れによりせん断及び徴粒子化を受けると言われ、次に凝固の完成のため適切な 反応ゾーンに移される。かかる凝固段階の後、プロセスの残りの部分は、実質的 に従来通りであり、廃棄生成物。しょう液。からのクラムの分離及びクラムの洗 浄呂乾燥が関与する。幾分か類似の方法が、Heller等に対する米国特許第3,048, 559号に記述されている。カーボンブラックの水性スラリが、天然又は合成エラ ストマー又はラテックスの流れと連続的に配合される。2つの流れは、激しい水 の乱流及び衝撃が関与すると説明されている条件下で、混合される。上述のHago pian等の特許の場合と同様に、カーボ

ンプラックスラリ及びエラストマーラテックスの組合せ流は、酸又は塩の凝固剤 溶液の添加によって、その後凝固させられる。

さまざまな産業において長い間、改良されたマクロ分散をもつ適切なエラストマー中に分散した微粒子充てん材、特に例えば、天然ゴム中に分散したカーボンプラックのエラストマー化合物に対するニーズが存在していた。上述の通り、改良されたマクロ分散は、それ相応に改善された美的及び機能的特性を提供することができる。特に望ましいのは、天然ゴム分子量が高くなるにつれてマクロ分散

の改善が達成される、天然ゴム中にカーボンブラックが分散した新しいエラストマー化合物である。本発明の目的は、これらの長い間求められてきたニーズの一部又は全てを満たすことにある。

#### 発明の開示

第1の形態に従うと、エラストマーマスターバッチを調製するための方法には、凝固ゴム反応装置の混合ゾーンに、微粒子充て利抗体及びエラストマーラテックス流体を同時に供給することが関与している。緩固ゴムゾーンが混合ゾーンから延びており、好ましくは、流入端部から排山端部へと下流に向かう方向に断面積を漸進的に増大させていく。エラストマーラチックスは天然でも合成でもよく、微粒子充てん材流体は、ラチックスを凝固させるのに有効なカーボンブラック又はその他の微粒子充てん材を含む。微粒子充てん材流体は、好官しくは注入される流体の連続高速ジェットとして混合ゾーンに供給され、一方ラテックス流体は、低速で供給される。微粒子充てん材流体の速度、流量及び微粒子濃度は、排山端部に先立って微粒子充てん材でエラストマーラチックスを実質的に完全に緩固するべく凝固ゴムゾーンの少なくとも上流部分内でラテックス流体の高いせん断を伴う混合及び混合物の乱流をひき起こすのに充

分なものである。かくして、酸又は塩の凝固剤を利用する必要なく、好ましい実 施形態に従って、実質的に完全な凝固を達成することができる。

もう1つの実施形態に従うと、エラストマーマスターバッチを製造する連続流力法には、疑問ゴムゾーン内でエラストマーラテックスと微粒子充てん材の混合物の半拘束連続流を樹立する凝固ゴム反応装置の混合ゾーンに対しラテックス流体及び微粒子充てん材流体を連続的かつ同時に供給することが含まれる。「中央は小球の形をしたエラストマーマスターバッチクラムが、凝固ゴム反応装置の混合ゾーン内へのラテックス及び微粒子充てん材流体流の進行中の供給と同時に、実質的な一定流として凝固ゴム反応装置の排出端部から排出される。特に、凝固ゴム反応装置の排出端部におけるブラグ型流及び大気圧又は近大気圧条件は、直ちに又はひきつづきさらなる処理段階を行なうためといったようにエラストマーマスターバッチ製品の制御及び収集を容易にする上できわめて有利である。

装置態様に従うと、好ましくは低圧の実質的に積層タイプのフロー条件で前記 凝固ゴム反応装置の混合ゾーンにエラストマーラテックス流体を供給するための 手段が提供され、又上述のとおりのエラストマーラテックスを巻込み混合ゾーン から下流に向って流れる混合物が凝固ゴム反応装置の排出端部に達する前に凝固 を達成するのに充分な速度又は運動エネルギーのジェットを作り出すのに充分な 圧力下で混合ゾーンに微粒子充てん材流体を同時に供給するための手段が提供さ れている。以下で詳述するいくつかの好ましい実施形態に従うと、エラストマー ラテックス流体を供給するための手段及び微粒子充てん材流体を供給するための 手段は各々、凝固ゴムゾーンを構成する実質的に管状の部材と一体化した混合へ ッド内の供給流路を含んでいてよい。混合ゾーンを、該混合ヘッド内のかかる供

給流路の接合部に具備することができる。いくつかの好ましい実施形態に従うと、混合ゾーンは単に凝固ゴムゾーンの同軸延長部分である。凝固ゴム反応装置の断面積の漸進的増加は、いくつかの好ましい実施形態において連続的であり、その他の好ましい実施形態においては段階的である。さらに、凝固ゴム反応装置には、以下できらに詳述する通り、その排出端部にダイバータ(diverter)といった任意の特長を具備することもできる。エラストマーマスターバッチの連続流製造のための本書で開示される装置の付加的な任意の及び好ましい特長については、以下の詳細な説明の中で論述する。

さらにもう1つの形態に従うと、以上で開示された方法又は装置の製品として、エラストマー複合体が提供されている。好ましい実施形態に従うと、これまで達成されたことのない、微粒子充てん材のマクロ分散ンベル、エラストマーの分子量、微粒子投入レベル、微粒子充てん材の選択(例えば例外的に高い表面積及びストラクチャーのカーボンブラック充でん材)及び/又はその他の特徴をもつ新期のエラストマー複合体が提供されている。この点に関して、ここで開示されている方法及び装置は、エラストマーの分子量の劣化をほとんど又は全く僅なわずに、天然ゴムといったエラストマーの中で、1.2未満さらに1未満というストラクチャー対表面積比DBP: CTABをもつカーボンブラックといった或る種の充てん材についてさえ、すぐれたマクロ分散を達成することができる。本発明のさら

にその他の形態に従うと、ここで開示されている方法又は装置によって製造されたエラストマー複合体から成る中間製品も、その最終製品と共に提供されている。

ここで開示されている方法及び装置によると、従来の凝固剤を使用しなくても 凝固を達成するのに充分であるフロー制御条件と乱流レベルでのエラストマーラ チックス及び微粒子充てん材の混合が関

与する連続流プロセスでエラストマーマスターバッチを製造することができる。 実際、ここではエラストマーと充て方材を強力に乾式素練りする必要も又液体ラチックス/微粒子組成物を凝固剂流又はタンクに選呈させる必要もなく、エラストマーマスターバッチクラムが達成されること、すなわち凝固したラテックスが得られることが音楽的にきわめて有利であることは、直ちに認識できるだろう。かくして、型通りの商業的実現においては、酸性凝固溶液を用いる場合のコストと複雑性を回避することができる。上述のHeller等の特許及びHagopian等の特許にあるようなラテックス及び微粒子の予備混合が関与する先行技術は、付随するコスト及び廃棄物処分上の不利点を伴う通常の凝固剂溶液に対するラテックス/微粒子混合物の露呈無く凝固を達成する可能性を認識さえしていない。

凝固ば五反応装置の混合ゾーンに対するラテックス流体及び微粒子充てん材流体の供給量は、凝固は五反応装置の排出端部において製品クラム内に遊離ラテックスも未分散充でん材もほとんどない形で高取量を達成するように、精確に調節することができる。理論に拘るわけではないが、凝固ゴム固体が混合ゾーン内及び/又はその下流の凝固ゴムゾーン内で形成されつつあるという点を除き、この混合ゾーン内では凝単相系が樹立されていることがここで理解できる。微粒子のラテックス流体内への徹底的な混合及び分散及び凝固のための微粒子充てん材流体ジェットの衝撃によるラテックスの充分を利流すなわち充分に活発なせん断を達成する上で、凝固ゴム反応装置の混合ゾーン内への微粒子充てん材流体のきわめて高い供給速度及びラテックス流体の供給との間の速度差が有意であると考えられている。高い混合エネルギは、制御された製品送り出しと合わせて、優れた分散をもつ製品マスターバッチクラムを生み出す。凝固ゴムは、製造後に望まし

い押占し物の形に成形される。

もう1つの形態に従うと、天然ゴムの中に分散した微粒子充てん材を含んで成 り、該充てん材のエラストマー複合体中のマクロ分散レベルが、未分散面積約0. 2%未満、好ましくは未分散面積約0.1%未満であるような新規なエラストマー復 合体が提供されている。以上の論述と一貫性をもたせるため、ここでマクロ分散。 というのは、10ミクロンより大きい欠陥についての未分散面積の百分率として測。 定されたカーボンブラックのマクロ分散D(%)を意味する。ここで開示されて いる天然ゴムマスターバッチ及びその他のエラストマー複合物においては、天然 ゴムの分子量すなわちゾル部分の曜6。( (重量平均) は、好ましくは少なくとも 約300,000、より好ましくは少なくとも約400,000であり、いくつかの好ましい実 施形態においては、400,000~900,000の間である。エラストマー複合体、任意に は、約0~20phr、より好ましくは約0~10phrのニキステンダ油及び/又はカー ポンプラック充てん材と天然ゴムを混ぜ合わせる上で任意に使用するのに周知で あるようなその他の成分を含んで成る。いくつかの好ましい実施例に関連して以 下で讃聞するように、ここで開示されている新規のエラストマー複合体はさわめ て望ましい物理特性及び性能特性を提供することができる。従って本発明は、多 大な技術的進步を提示している。

もう丁つの形態に従うと、カーボンブラック充てん材の一定のマクロ分散しべル、天然ゴムの分子量、カーボンブラック投入レベル、カーボンブラック特性(表面積及びストラクチャーを含む:例えば例外的に大きい表面積及び小さいストラクチャーをもつカーボンブラック充てん材)及び/又はその他の特性を含む、これまで得られなかった新規な物性の組合せが存在する新しいエラストマー複合体が提供されている。本発明のさまざまな形態に従って、マスターバッチ組成物及び中間製品が、それらから形成される最終製品と共

#### に提供される。

本発明のさまざまな実施形態の上述の及びその他の態様及び利点については、いくつかの好ましい実施形態についての以下の詳細な記述を読むことによりさら

に良く理解できるであろう。

# 図面の簡単な説明

いくつかの好ましい実施形態についての以下の論述では、添付の図面が参考と されている。なお図面中、

■図工は、いくつかの好ましい実施形態に従ってエラストマーマスターバッチを 調製するための装置及び方法の概略的流れ図による例示である。

図2は、図1の観略的流れ図と一貫性ある好ましい実施形態の一部機略図を含めた立面図である。

図3は、図1の観略的流れ図と一貫性ある好ましい一変形実施形態の一部概略 図を含めた立面図である。

図4は、図3の実施形態の混合ヘッド/凝固ゴム反応装置アセンブリの、一部 断面図を含めた、立面図である。

図5は、好ましい一変形実施形態を例示する、図4の図に対応する一部断面図 となった立面図である。

図6は、図5のライン6ー6に沿って切り取られた断面図である。

図7は、好ましい一変形実施形態で使用するのに適した混合へッドの断面図である。

図8は、本発明に従ったいくつかのきわめて好ましいマスターバッチ組成物の中で利用されるカーボンブラックの表面積及びストラクチャー特性(CTAB及びDB PA)を示すグラフである。

図 9~25は、エラストマー複合体により場合によって達成される

物理的特性及び性能特性における者しい改善を例示する比較用の対照標本に関するデータを伴う、図8に示されたカーボンブラックを含む本発明に従って新規なエラストマー複合体のマクロ分散、天然ゴム分子量及び/又はその他の特性を示すグラフである。

図26~29は、カーボンブラックの形態学的特性すなわち、ストラクチャー(DB PA)及び表面積(CTAB)を示し、特定の製品利用分野に適しているカーボンブラックの領域又はゾーンを(かかる形態学的特性によって)識別するグラフである

メ そして、

図30及び31は、比較のための対照標本を伴う、本発明に従った新規なエラストマー複合体のマクロ分散及び天然ゴム分子量を示すグラフである。

添付図面は必ずしも一定の比例で精確に縮小されたものでないということを理解すべきである。いくつかの特長は、例示上の便宜又は明確さのため拡大又は縮小されていることがある。以下の論述において使用される方向性の指示は、相反する記述がないかぎり、又は前後関係から相反して明らかでないかぎり、図面に例示された構成要素の方向性に基づくものである。一般に、本発明の異なる実施形態に従った装置は、さまざまな配置で利用することができる。本発明の利点から見て、型通りの技術的技量を利用しかつ望ましい生産量、材料選択、使用すイクルなどといった意図された利用分野に特定の周知の要因を考慮に入れて、本発明の装置のための適切な可法及び方向性を決定することは、当業者の能力の範囲内に入るものである。上つの図面で使用されている参照番号は、同じ特長又は要素についてその他の図面でも使用され得るものである。

# 発明を実施するための最良の形態

ここで開示されている方法及び装置によると、従来の凝固制を使

用しなくても凝固を達成するのに充分であるフロー制御条件と削流レベルでのエラストマーラテックス及び微粒子充てん材の混合が関与する連続流プロセスで、エラストマーマスターバッチを製造することができる。実際、ここではエラストマーと充てん材を強力な模式素練りする必要も又は液体ラテックス/微粒子組成物を凝固剂流又はタンクに露呈させる必要もなく、エラストマーマスターバッチクラムが達成されること、すなわち凝固したラテックスが得られることが商業的にきむめて有利であることは、直ちに認識できるだろう。かくして、型どおりの商業的実現においては、酸性凝固溶液を用いる場合のコストと複雑性を回避することができる。上述のHeller等の特許及びHagopian等の特許にあるようなラテックス及び微粒子の予備混合が関与する先行技術は、付随するコスト及び廃棄物処分上の不利点を伴う通常の凝固剂溶液に対するラテックス/微粒子混合物の露呈無く凝固を達成する可能性を認識さえしていない。

凝固ゴム反応装置の混合ゾーンに対するラテックス流体及び微粒子充てん材流体の供給量は、凝固ゴム反応装置の排出端部において製品クラム内に遊離ラテックスも未分散充でん材もほとんどない形で高取量を達成するように、精確に調節することができる。理論に拘るわけではないが、凝固ゴム固体が混合ゾーン内及び/又はその下流凝固ゴムゾーン内で形成されつつあるという点を除き、この混合ゾーン内では擬単相系が樹立されるということがここで理解できる。微粒子のラテックス流体内への徹底的な混合及び分散及び凝固のための微粒子充てん材流体ジェットの衝撃によるラテックスの充分な孔流すなわち充分に活発なせん断を達成する上で、凝固ゴム反応装置の混合ゾーン内への微粒子充てん材流体のきわめて高い供給速度及びラテックス流体の供給との速度差が有意であると考えられている。高い混合エネルギーは、制御された製品送り出しと合わせ

て、優れた分散をもつ製品マスターバッチクラムを生み出す。凝固ゴムは、製造 後に望ましい抑出し物の形に成形される。

ここで開示されている新規のエラストマー複合体を製造するための方法及び装置のいくつかの好ましい実施形態について以下で論述する。本発明のさまざまな好ましい実施形態にさまざまな異なる充ても材及びエラストマーを利用できるものの、本発明の方法及び装置の態様についての以下の詳細な説明の一部は、場合によって便宜上、天然ゴム及びカーボンブラックを含むマスターバッチを製造する上でその使用をまず第1に記述している。本開示の利点から見て、数多くの代替的な又は付加的なエラストマー、充ても材及びその他の材料を含むマスターバッチを製造するための以下の論述される作業原理に従って、ここで開示する方法及び装置を利用することは、当業者の能力の範囲内に入るものである。要するに、エラストマーマスターバッチを調象するためのかかる方法は、凝固ゴム反応装置の混合ブーンに対し同時にカーボンブラック又はその他の充ても材のスラリー、及び天然ゴムラテックス流体又はその他の適切なエラストマー流体を供給することが関与している。凝固ゴムブーンが混合ブーンから延び、好ましくは流入端部から排車端部まで下流に向かう方面で断面積を増加させている。該スラリーは、天然ゴムラテックス流体が比較的低い速度で供給されるのに対して、好ましく

は注入される流体の連続高速ジェットとして混合ゾーンに供給される。充てん材 スラリの高い速度、流量及び微粒子濃度は、ラテックス流体の混合及び高いせん 断、凝固ゴムゾーンの少なくとも上流部分内での混合物の乱流をひき起こし、排 出端部に先立ってエラストマーラテックスを実質的に完全に凝固させるのに充分 なものである。かくして、好ましい実施形態に従って、酸又は塩の凝固剤を利用 する必要はなく、実質的に完全な凝固を達成することができる。こ

ラストマー複合体を製造するための好ましい連続流方法には、凝固ゴムゾーン内 でラテックスと充てん材スラリーの混合物の半拘束連続流を樹立する凝固ゴム反 応装置の混合ゾーンに対しラテックス流体及び充てん材流体を連続的かつ同時に 供給することが含まれる。 山上 又は小球の形をしたエラストマー複合体クラム が、凝固ゴム反応装置の混合ゾーン内へのラテックス及びカーボンブラックスラ リーの流れの進行中の供給と同時に、実質的な一定流として凝固ゴム反応装置の 排出端部から排出される。特に、凝固ゴム反応装置の排出端部におけるプラグ型 流及び大気圧又は近大気圧条件は、直ちに又はひきつづきさらなる処理段階を行 なうためといったようにエラストマー複合体製品の制御及び収集を容易にする上 できわめて有利である。凝固ゴム反応装置の混合ゾーンに対する天然ゴムラチッ クス流体及びカーボンブラックスラリーの供給量は、緩固ゴム反応装置の排出端 部において製品クラム内に遊離ラテックスも未分散カーボンブラックもほとんど ない形で、高収量を達成するように、精確に調節することができる。理論に拘る わけではないが、凝固ゴム団体が混合ゾーン内及び/又はその下流の凝固ゴムゾ ーン内で形成されつつあるという点を除き、この混合ゾーン内では擬単相系が樹 立されるということがここで理解できる。微粒子のラチックス流体内への徹底的 な湿合及び分散及び凝固のための微粒子充てん材流体ジェットの衝撃によるラチ ックスの充分な乱流すなわち充分に活発なせん断を達成する上で、凝固ゴム反応 装置の混合ゾーン内へのカーボンブラックスラリーのきわめて高い供給速度及び 天然ゴムラテックス流体の供給との速度差が有意であると考えられている。高い 混合エネルギは、制御された製品送り出しと合わせて、優れたマクロ分散をもつ 新規の製品を生み出す。凝固ゴムは、製造後に望ましい押出し物の形に成形され  $Z_{\alpha}$ 

ここで開示されているエラストマー複合体を製造するための前述の好ましい装 置及び技術は、添付図面と関連して論述されており、ここでエラストマーマスタ 一バッチを製造する連続流方法は、好ましくは断面積が漸進的に増大しながら流 入端部から排出端部まで延びる細長い凝固ゴムゾーンを形成する凝固ゴム反応装 置内で、充てん材スラリー例えばカーボンブラックの水性スラリーと混合された。 例えば天然ゴムラチックス(フィールドラチックス又は濃縮物)といったエラス トマーラチックスの半拘束定置流を利用している。 半拘束上流という語は、き わめて有利な特長を意味する。ここで使用されるこの語は、凝固ゴム反応装置内 で混合されたラテックス流体と充てんセスラリーが進む流路が混合ゾーンの上流 で閉じられているか又は実質的に閉じられ、凝固ゴム反応装置の反対側の下流端 部すなわち凝固ゴム反応装置の排出端部において開放していることを意味するも のとして意図されている。疑問ゴムゾーンの土流部分内の乱流条件は、凝固ゴム 反応装置の開放排出端部における実質的にプラグ流タイプの条件と同時に、進行 中の少なくとも準安定状態の形で維持される。排由端部は、少なくとも、一般に 大気圧又はほぼ大気圧で、標準的に脱水押出し機の供給ホッパといった適切な収 集手段内に(任意には囲い板付き又はふるい付き締路内で)単純に重力で流下す ることによる際国ゴムの排出を可能にするという意味で「開放」している。かく して半拘束流は、結果として、凝固ゴム反応装置の少なくとも一部分の内部で軸 方面に又は長手方面に延びる毛流勾配をもたらす。理論に拘るわけではないが、 ここで凝固ゴムゾーンは、凝固ゴム反応装置の上流部分における強い乱流の混合 及び凝固と同時に排出端部における固体生成物の実質的にブラグタイプの排出流 を可能にする上で有意であることがわかっている。混合ゾーン内への連続ジェッ トとしてのカーボンブラック又はその他

の充てん材スラリーの注入は、実質的にプラグタイプのフロー条件下そして凝固 ゴム反応装置の排出端部において一般的に大気圧の下で排出つれるエラストマー マスターバッチクラムの収集を同時に容易にしながら、同時進行の形で行なわれ る。同様にして、スラリーノズルを通して混合ゾーン内への、そして標準的には 凝固ゴムゾーンの下流端部でのスラリーの軸流速度は、排出端部よりも著しく高い。スラリーの軸流速度は、標準的には、好ましくは以下で論述する好ましい実施形態に従った小さな中ぐり軸方向に向いた供給管から混合ゾーン内に入るにつれて、秒速数百フィートとなる。標準的な利用分野において拡張する断面積をもつ機固ゴム反応装置の流入端部における結果として得られる流れの軸流速度は、例えば秒速5~20フィート、より一般的には秒速7~15フィートである。排出端部では、ここでも対照的に、そこで排出されつつあるマスターバッテクラムの軸流速度は、秒速約1~10フィート、より一般的には秒速2~5フィートである。かくして前述の単拘束和流点、その後の処理のため凝固ゴム反応装置からの制御された好ましい擬成形済み製品の送り出しを伴って、酸、塩又はその他の凝固的溶液の流れ又はタンクの中でのその後の処置がない場合でさえカーボンブラック又はその他の充て入材との混合により天然ゴム又はその他のエラストマーラテックスが凝固されるというさわめて有意な利点を達成する。

この点において、排出端部で「開放」しているものとしての凝固ゴム反応装置に対する言及は、排出端部が必然的に視野にさらされているか又は手で容易に触れることができるということを意味するよう意図されてはいない。これはむしろ、ダイバーダ(以下で詳述する)、乾燥機などといった収集装置又はその後の処理装置に永続的に又は着脱可能な形でとりつけられていてよい。凝固ゴム反応装

置の排出端部は、高い圧力下にありかつ混合ゾーンにおける何らかの任意の後向き(すなわち上流に向かって)の走行に対し密封されている疑問ゴム反応装置の 凝問ゴムゾーン内の乱流が、この排出端部に向かって走行しそこから退出するに つれて上述の圧力及び/又は速度勾配を樹立できるようにされているという重要 な意味合いで、開放しているのである。

この点において、流れの乱れは、排出端部に向かって凝固ゴム反応装置に沿って少なくなるということも高識すべきである。容量利用百分率、材料の選択などといった要因に応じて、排出端部に先立って、固体生成物の実質的なブラグ流が達成される。ここで流れが凝固ゴム反応装置の排出端部で又なその前で実質的に

プラグ流であるという言及は、排出端部における流れが、まず第1にそして完全にマスターバッチクラムすなわち凝固したエラストマーマスターバッチの小球つまり「虫」で構成されているという事実に照らして理解されるべきである。クラムは、標準的に流れが実質的にプラグ流となる凝固ゴムゾーンに治った箇所における疑問ゴムゾーンの内側形状に合わせて、擬成形される。「虫」又は小球のつねに前進する質量は、有利には、排出端部に向かって一般に又は主として軸方向に走行しており、しかも排出端部近くで凝固ゴムゾーンの一定の与えられた断面内で任意の時点でかなり均等な速度を有し、このためさらなる処理のため容易に以集され制御されるようになっているという意味で、プラグタイプの流れを有している。かくして、ここで開示されている流体和混合形態は、有利にも、定常状態又は準定常状態の条件にて行なわれ、その結果、高ンベルの製品均質性がもたらされる。

ここで開示されている方向及び装置の好ましい一実施形態は、図1に**概**略的に示されている。当業者であれば、システム構成、構成

要素選択などのさまざまな面が、意図された利用分野の特定の特徴によって或る程度は左右されることになるということを認識するだろう。従って、例えば、システムの最大処理能力及び材料選択の柔軟性といった要因がシステム構成要素のサイズ及びレイアウトに影響を及ぼすことになる。一般に、このような考慮事項は、本開示の利点から見て、当業者の能力範囲内に充分人るものである。図1に例示されているシステムは、凝固ゴム反応装置の混合ゾーンまで低圧及び低速で連続的に天然ゴムラテックス又はその他のエラストマーラテックス流体を供給するための手段を内含していることがわかる。より特定的に言うと、ラテックスの供給物を加圧状態に保持するためのラテックス圧力タンク10が示されている。代替的には、凝固ゴム反応装置14の混合ゾーンに供給ライン12を介して供給されるべきエラストマーラテックス流体を保持するように適合されたぜん動ポンプ又はポンプシリーズ又はその他の適切な供給手段が具備された状態で、ラテックス比較タンクを使用することができる。タンク10内のラテックス流体は、空気圧又は窒素圧などの下に保持されてよく、かくしてラテックス流体は、空気圧又は窒素圧などの下に保持されてよく、かくしてラテックス流体は、好ましくは10ps

ig未満、より好宝しくは約2~8psig、そして標準的には約5psigのゲージ圧で混合ゾーンに供給されることになる。ラテックス供給手段のラテックス供給圧力及び流動ライン、接続などは、流れるラチックス流体内のせん断を、合理的にできるかぎり低くさせるように配置されるべきである。好ましくは全ての流動ラインは、たとえあったとしても大きい半径の曲りしか伴わない平滑でかつ形を揃えて連結されたライン同士の相互接続でなければならない。圧力は、混合ゾーン内への望ましい流速を由すように選択されており、有用な流速は秒速約12フィート以下である。

適切なエラストマーラテックス流体には、天然及び合成のエラス

トマーラテックス及びラテックス配合物の両方が含まれる。ラテックスは当然の ことながら、選択された微粒子充てん材による凝固に適したものでなくてはなら ず、最終ゴム製品の意図された用途又は利用分野に適したものでなくてはならな い。木牌示の利点から見て、ここで開示されている方法及び装置の中で使用する ための適切なエラストマーラチックス又はエラストマーラチックスの適切な配合 物を選択することは、当業者の能力範囲内に充分入るものである。エラストマー の例としては、ゴム、1、3 ブタジエン、スチレン、イソブレン、イソブチレ ン、2.3 ジメチル 1.3 ブタジエン、アクリロニトリル、エチレン、枚 びプロピレンなどの重合体(例えぶ単独重合体、共重合体及び/又は三成分共重 合体)があるが、これらに限られるわけではない。エラストマーは、約一120℃ ~約10 ℃の範囲の示差走衝熱量測定法(DSC)により測定されるガラス遷移温度 (Ta) を有することができる。例としては、スチレンーブタジニンゴム (SBR) 、天然ゴム及びその誘導体、例えば塩化ゴム、ポリプタジエン、ポリイソプレン 、ポリ(スチレンーコープタジエン)及びそれらのいずれかの油展された誘導体 が含まれるが、これらに限られるわけではない。以上のもののいずれかの配合物 も使用することができる。ラテックスは、水性キャリヤ液の中に入っていてよい 。代替的には、液体キャリヤは、炭化水素溶剤であってもよい。いずれの場合で も、エラストマーラテックス流体は、適切な速度、温度及び濃度での混合ゾーン 内への制御された連続的供給に適したものでなくてはならない。特定の適切な合 成ゴムとしては、19部のスチレンと81部のブタジエンの共配合体、30部のスチレンと70部のブタジエンの共重合体、43部のスチレンと57部のブタジエンの共重合体及び50部のスチレンと50部のブタジエンの共配合体といったような、約10~約70重量バーセントのスチレン及び約90~約30

重量パーセントのブタジエンの共重合体:ポリブタジエン、ポリイソブレン、ポリクロロブレンなどといった共役ジエンの重合体及び共重合体、そしてスチレン、メチルスチレン、クロロスチレン、アクリロエトリル、2ービエルーピリジン、5ーメチルー2ービエルピリジン、5ーエチルー2ービエルピリジン、2ーメチルー5ービエルピリジン、アルキル間換アクリレート、ピエルケトン、メチルイソプロペエルケトン、メチルビエルエーテル、アルファメチレンカルボン酸及びそのエステル及びアミド、例えばアクリル酸及びジアルキルアクリル酸アミドといった、共重合可能なエチンン基合有単量体とこのような共役ジエンの共重合体が含まれる。同様にここで使用するのに適しているのは、エチンン及びプロビンン、プテンー1、及びペンテンー1といったその他の高アルファオレフィンの共重合体である。以下でさらに記述するように、本発明のゴム組成物は、エラストマー及び充てん材に加えて、硬化剤、カップリング剤そして任意にはさまざまな加工助剤、エキステンダ油及び労化防止剤を含有することができる。

この点において、ここで開示するエラストマー複合体が、加流組成物(VR)、 熱可塑性加流がム(TPV)、熱可塑性エラストマー(TPE)及び熱可塑性ポリオレフィン(TPO)を内含することを理解すべきである。TPV、TPE及びTPO材料は、性能特性を失なうことなく何度も抑用し加工され成形され得るその能力によって、さらに分類される。かくして、エラストマー複合体を作るにあたっては、単数又は複数の硬化剤、例えば硫黄、硫黄供与体、活性剤、促進剤、過酸化物及び、エラストマー組成物の加流を行なうのに用いられるその他の系を用いることが可能である。

エラストマーラテックスが天然ゴムラテックスを含む場合、該天然ゴムラテックスは、フィールドラテックス又はラテックス濃縮物。

(例えば蒸発、遠心分離又はクリーミングにより製造されるもの)を含むことができる。天然ゴムラチックスは、当然のことながら、カーボンブラックによる凝固に適していなくてはならない。ラチックスは標準的には水性キャリヤ液の中に入って提供される。代替的には、被体キャリヤは炭化水素溶剤であってもよい。いずれの場合でも、天然ゴムラテックス流体は、適切な速度、温度及び濃度での混合ゾーン内への制御された連続的供給に適したものでなくてはならない。天然ゴムラテックスの周知の不安定さには、それが、混合ゾーン内のカーボンブラックスラリーの異常に高い速度及び運動エネルギーに遭遇した時点での前述の半拘束乱流の中に巻込まれるシステム全体を通して比較的低い圧力及び低いせん断を受けるという点で、対応がなされている。いくつかの好ましい実施形態においては、例えば、天然ゴムは約5 psigの圧力、秒速約3~12フィート、好ましくは秒速約4~6フィートの範囲内の供給速度で、混合ゾーンに供給される。本開示の利点及び業界で一般に充分認められている選択基準の知識をもってすれば、適切なラチックス又はラチックス配合物の選択は、当業者の能力範囲内に充分入るものである。

微粒子充てん材流体例えばカーボンプラックスラリーは、供給ライン16を介して凝固ゴム反応装置14の流入端部で混合ゾーンに供給される。スラリーは適切なキャリヤ流体の中に任意の充てん材を含むことができる。キャリヤ流体の選択は、微粒子充てん材の選択及びシステムバラメータに大幅に左右されることになる。水性及び非水性の両方の液体を使用することができるが、カーボンブラック及び或る種のその他の充てん材スラリーの製造におけるその使用適性、入手可能性及びコストから見て、数多くの実施形態において水が好まれる。

カーボンブラック充てん材が使用される場合、カーボンブラック

の選択は、エラストマーマスターバッチ製品の意図された用途に大幅に左右されることになる。任意には、カーボンブラック充てん材は同様に、本書で開示されている原則に従ってスラリー化され混合ゾーンに供給できるあらゆる材料を含むこともできる。適切な付加的微粒子充てん材としては、例えば、導電性充てん材、補強用充てん材、短纖維(標準的に40未満のエノDアスペクト比を有するもの

<u>)、フレークなどが含まれる。かくして、ここで開示されている方法及び装置に</u> 従ったエラストマーマスターバッチを製造する上で利用できる微粒子充てん材例 としては、カーボンブラック、ヒュームドシリカ、沈降シリカ、コーティングさ れたカーボンブラック、化学的に機能化されたカーボンブラック、例えば付着し た有機基をもつカーボンブラック、及びケイ素処理されたカーボンブラックが、 単独又は互いに組合わせた形で含まれる。化学的に機能化された適切なカーボン ブラックとしては、国際出願第PCT/US95/16194(W09618688)の中に開示されてい。 るものが含まれ、該出願の開示は、本書に参考として内含されている。ケイ素処 理されたカーボンブラックの中では、カーボンブラックの固有の部分としてカー ボンブラック凝集体の少なくとも「部分を通して、ケイ素の酸化物又は炭化物と いった種を含有するケイ素が分布させられている。従来のカーボンブラックは、 各々、炭素である単相から成る複数の集体の形で存在する。この相は、黒鉛化微 結晶及び/又は無定形炭素の形で存在することができ、通常は2つの形で混合で ある、本書の他の箇所で論述している通り、カーボンブラック凝集体は、この繁 集体の表面の少なくとも一部分の上にシリカといったケイ素含有種を被着させる ことによって変性させることができる。結果は、ケイ素コーティングされたカー ボンブラックとして記述することができる。本書にケイ素処理されたカーボンブ ラックとして記述される材料は、コーデ

ィング又はその他の変性を受けたカーボンブラック凝集体ではなく、実際には異なる種類の凝集体を表わす。ケイ素処理されたカーボンブラックの中では、凝集体は2つの和を含有している。工和は炭素であり、これは黒鉛化微結晶及び/又は無定形炭素としてもなお存在することになるものであり、一方第2の相は、シリカである(又はその他のケイ素含有種でもありうる)。かくして、ケイ素処理されたカーボンブラックのケイ素含有種の相は、該凝集体の固有部分であり、これは該凝集体の少なくとも一部分全体にわたり分布させられている。多相凝集体は、その表面上に設着されたケイ素含有種をもつ予備形成された単相カーボンブラック凝集体から成る上述のケイ素コーティングされたカーボンブラックとはかなり異なるものであることがわかるだろう。このようなカーボンブラックは、カ

ーボンプラック凝集体の表面に対しシリカ官能性を与えるべく表面処理され得る。このプロセスにおいては、凝集体の表面の少なくとも一部分の上にシリカ(ならびに場合によってはその他のケイ素含有種)を被着又はコーティングさせるべく、既存の凝集体を処理する。例えば、日本公開公報第63-63755号で論述されている通り、6以上といった高い門で水性スラリー中でカーボンブラック凝集体の表面上に無定形シリカを被着させるのにケイ酸ナトリウム水溶液を使用することができる。より特定的には、例えば約5重量%のカーボンブラック及び95重量%の水から成る水性スラリーを得るべく、カーボンブラックを水中に分散させることできる。スラリーは、85~90℃いった約70℃以上の温度まで加熱され、囲はアルカリ溶液を用いて10~11の範囲といった6以上の囲に調整される。カーボンプラック上に被着させることが望まれる量のシリカを含有するケイ酸ナトリウム溶液、及びケイ酸ナトリウム溶液を中性間にもっていくための酸溶液が別々に調製される。該ケイ酸ナトリウム及び酸溶

液はスラリーに対して滴下により添加され、このスラリーは適宜酸又はアルカリ 溶液でその出発時の即債に維持されている。溶液の温度も同様に維持される。ケ イ酸ナトリウム溶液のための提案されている添加速度は、一時間につき、カーボ ンブラックの合計量に対して約3重量パーセントのケイ酸を添加するよう滴下添 加を較正するためのものである。添加中スラリーは撹拌されていなくてはならず 、その完了後の数分(例えば30分)から数時間(すなわち2~3時間)、撹拌す べきである。これとは対照的に、ケイ素処理されたカーボンブラックは、揮発性 ケイ素含有化合物の存在下でカーボンブラックを製造することによって得ること ができる。かかるカーボンブラックは、好ましくは、燃焼ゾーンとそれに続く収 東する直径をもつゾーン、制限された直径をもつ原料注入ゾーン及び反応ゾーン を有するモジュール式又は「段階」炉カーボンブラック反応装置の中で製造され る。反応ゾーンの下流には急冷ゾーンがある、標準的には、一般に水である急冷 用流体が、反応ゾーンから流れる新しく形成されカーボンブラック粒子の流れの 中に噴霧される。ケイ素処理されたカーボンブラックを製造するにあたっては、 前述の運発性ケイ素含有化合物は、急冷ゾーンの一流の1ヵ所でカーボンブラッ ク反応装置の中に導入される。有用な化合物は、カーボンブラック反応装置温度の揮発性化合物である。その例としては、テトラエトキシオルトシリケート(TEDS)及びテトラメトキシオルトシリケートといったケイ酸塩、テトラクロロシラン及びトリクロロメチルシランといったシラン;及びオクタメチルシクロテトラシロキサン(OMTS)といったコラチル(colatile)シリコーン垂合体がある。揮発性化合物の流量は、処理されたカーボンブラック中のケイ素の重量正分率を決定することになる。処理されたカーボンブラックの中のケイ素の重量百分率は標準的には約0.1~25パーセント、好なし

くは約0.5~約10パーセント、より好ましくは約2~約6パーセントの範囲内にある。揮発性化合物は、カーボンブラック形成原料と予め混合させ、反応ゾーン内に原料と共に導入することができる。代替的には、揮発性化合物を、原料注入点から上流又は下流で、別途反応ゾーンに導入することもできる。

上記の如く添加剤を利用することもでき、またその場合シリカ又はカーボンブラックのカップリングに有効であるカップリング剤は、シリコン処理されたカーボンブラックについても有効と考えられる。微粒子充填剤に適したカーボンブラックやその他多くの添加剤は市販されており、当業者に公知である。

微粒子充填剂又は微粒子充填剂混合体は、使用するエラストマーのマスターバッチ生成物に合わせて選択する。本使用例の如く、本明細書開示の原理に基づきスラリー化でき、混合ゾーンを提供できる物質であれば、いずれも微粒子充填剤として使用できる。好適な微粒子充填剤の例としては、伝導性充填剤、強化充填剤、短繊維充填剤(典型的には上/D比が4.0以下)、プレークなどがある。上記カーボンブラックならびにシリカ型充填剤に加えて、粘土、ガラス、アラミド繊維の様なボリマー等からも充填剤を作製することができる。本発明に携示した利益をもたらす本明細書開示の方法と装置を用いるために好適な微粒子充填剤を選択することは当業者の通常の技術範囲であり、エラストマー組成への利用に好適である充填剤はいずれも本発明開示の技術を利用するエラストマー組成に応用できると考えられる。もちろん本明細書開示の各種微粒子充填剤を混合して使用することもできる。

図1に示す本発明の好適な実施態様は、特にカーボンブラックの水性スラリーから成る微粒子充填剤液の調整に好適である。既知原理に従えば、単位重量当たりの表面積が小さいカーボンブラックを

微粒子スラリー中で使用して単位重量当たり大きな表面積を持つ低濃度カーボンプラックと同様の凝結効率を得るためには、その濃度を高くしなければならないことが分かる。撹拌混合タンク18に水とカーボンブラック、何えば特別にペレット状にしたカーボンブラックを加えて、開始混合液を調整する。この混合液を由口20から、隔膜ボンプ等のボンブ24が装着された送液ライン22に流す。混合液はライン28を流れて人口30を通り、コロイドミル32又はその他のパイプライングラインダー等に導かれる。カーボンブラックは水性担体液内に分散して分散液を形成され、この分散液は由口31を通り、送液ライン33からホモジナイザー34に向から。ポンプ装置36は連続空洞ボンブ又は同類のものが好ましく、また送液ライン33と連結している。ホモジナイザー34は、例えばMicrofluidics。International Corporation(Newton, Massachusetts, USA)より市販されている

Microfluidizerやシステムが好ましい。別の好適なホモジナイザーにはAPV Gaulin、Inc(Wilmington、Massachuserts、USA)のAPVホモジナイザー部門より入手できるモデルMS18、MS45とMC120がある。その他の好適なホモジナイザーも市販されており、それは本発明開示の利益を提供される当業者に公知であると考えられる。典型的には、上記システムを利用して水中にて調整されたカーボンブラックはおよそ90%以上がおよそ30ミクロン未満の大きさの集塊体であり、より好ましくはおよそ90%以上がおよそ20ミクロン未満の大きさの集塊体である。カーボンブラックを平均の大きさが5ー15ミクロン、例えばおよそ9ミクロンまで粉砕することが好ましい。カーボンブラックは出口38を経てホモジナイザーから出て、供給ライン16を通り混合ゾーンに入る。スラリー圧はホモジナイザー工程にて10,000から15,000psiに達し、ホモジナイデーから出るときはおよそ600psi以上である。過剰な水あるいはその他の担体を取り除く作

業を軽減するためには、カーボンブラック含有量は高いことが好ましい。典型例

ではおよそ10から30重量%カーボンブラックが好ましい。本発明異示により利益を受ける当業者は、このスラリーのカーボンブラック含有量(重量%)と混合ブーンへのスラリーの流速が、マスターバッチに所望されるカーボンブラック含有量(phr)を得るための混合ゾーンへの天然ゴムラテックス流速と同等でなければならないことを気づくだろう。カーボンブラックの含有量は、生成物に想定される応用方法に適した材料の特徴と性能を得る場合に既知である原則に従って選択される。典型例では、およそ30phr以上のマスターバッチのカーボンブラック含有量を得るためには、CTAB位が10以上のカーボンブラックが十分量用いられる

スラリーは調整後すぐにマスターバッチ生産に使用されることが好ましい。スラリーを運ぶ送液管と、場合によって存在する貯留タンク等は、スラリー中のカーボンブラックが分散状態を実質的に保つ状態を確立し、又は維持するものでなければならない。スラリー中の微粒子充填剤が明らかに再凝結したり、沈殿することを防止し、あるいは実用的範囲まで軽減しなければならない。例えば、全ての送液ラインは平滑で、ライン間の接続も滑らかであることが好ましい。場合によっては、ホモジナイザーと混合ゾーンの間にアキュムレイターを用いて、混合ゾーン内のスラリーノズルチップに於けるスラリー圧と速度の変動を抑制する。

上記の適当な工程パラメータの下に、供給ライン12を通り混合ゾーンに入った 天然ゴムラテックス液又はその他のエラストマーラテックス液と供給ライン16を 通り混合ゾーンに入ったカーボンブラックスラリーから、新規なエラストマー組 成、特にエラストマーマスターバッチが生産できる。エラストマーマスターバッ チに各種の添加剤を加える方法も提供される。工種類以上の添加剤からなる添加

液を独立した供給流として混合ゾーンに供給することができる。好ましければ1 種類以上の添加剤を前もってカーボンブラックスラリー又はより典型的にはエラストマーラデックス液と混合することもできる。添加剤は、例えば乾燥混合法により後でマスターバッチ内に混ぜ入れることもできる。各種の添加剤が当業者に高値であり、例えば酸化防止剤、オゾン亀裂防止剤、可塑剤、加工助剤(例えば液性ボリマー、油等)、機脂、難燃剤、増量剤オイル、光浸剤やこれらの混合物 がある。これら添加剤の一般的な利用と選択は当業者に公知である。本明細書用示のシステムでの応用は、本開示の利益と共に容易に理解できるだろう。特定の他の実施態様では、同様にして加備剤を取り込ませ、加備ペース化合物と見なすことができる加硫エラストマー複合体を製造することができる。

混合ゾーン/凝結ゾーンアッセンブリーについて以下詳細に論じる。エラストマーマスターバッチクラムは凝固ゴム反応器14の排出端を通り、適当な乾燥装置内に送られる。図1の好適な実施態様では、マスターバッチクラムは多段階で乾燥される。まず脱水押山し機40に通し、ついでコンペアーに乗せて、又は重力により減下、もしくは他の適当な手段41により乾燥押出し機42に通す。図1に示すカーボンブラック充填剤と一緒に天然ゴムマスターバッチを製造する通常の好適な実施態様では、脱水/乾燥工程により典型例では水分含有量をおよそりから1重量%まで、好ましくは、0から0.5重量%まで低下させる。好適な乾燥機は良く知られており、また市販もされているもので、例えば押出し乾燥機、流動層乾燥機、熱風あるいはその他のオーブン乾燥機等であり、French 0ilMachinery Co., (Piqua, Ohio, USA) により発売されているFrench Millsの様な装置である。

|乾燥押出し機42から押し出された乾燥されたマスターバッチクラ

ムは冷却コンペアー44によりバーラー(baler) 46に送られる。バーラーは図1の装置に任意に設けられた都合のよい特徴であり、この中でマスターバッチクラムはチャンバー内に圧縮され、成形された安定した圧縮ブロック等になる。典型的には、運搬やその後の加工用に25から75ボンドのエラストマーマスターバッチがブロックあるいはペールに圧縮される。あるいは、製造物はクラムを切ってペンットの様にして供給されることもある。

図1の実施態様に好適な、混合ゾーン/凝固ゴムゾーンアッセンブリーを含む 凝固ゴム反応器14の寸法ならびに特別な設計上の特徴は、所望の処理能力、加工 する材料の選択等といった設計要因に一部依存している。好適な実施態様の一つ を図2に示すが、本例では凝固ゴム反応器48は、凝固ゴムゾーン52に結合部54で 液体一密着シールにより取り付けられた混合ヘッド50を有する。図2には、エラ ストマーラテックスを混合ゾーンに送り込む第一サプシステム56、カーボンプラックスラリー又は別の微粒子充填剤を混合ゾーンに送り込むサプシステム58が図示されている。混合ハッド50は3つの送液チャンネル60,61,62を有している。送液チャンネル60は天然ゴムラテックス液月であり、送液チャンネル62はガスならびに/又は添加剤を直接送り込むためのものである。添加剤を直接注入するのに好適な実施態様では、炭水化物添加剤または、より一般的な非水混和性添加物を利用することで大きな利点が得られる。乳剤中間体を利用してエラストマーラテックスと前混和するのに好適な添加乳剤を作ることができることは良く知られているが、添加剤を直接注入する本発明異示の好適な実施態様によれば乳剤中間体が必要無くなるだけでなく、タンク、分散装置等の従来乳剤作製に必要とされた装置を排除することができる。従って、製造コストを下げ、

工程を単純化することができる。以下述べる如く、スラリーが混合ゾーンに送り 込まれる供給チャンネル61は、混合ゾーンと凝固ゴム反応器の凝固ゴムゾーンの 両方に同軸であることが好ましい。1本の供給チャンネルだけがエラストマーラ テックス液を受け取る様に示されているが、スラリーが混合ゾーンに送り込まれ る中央供給チャンネルの回りに好適な数の供給チャンネルを配置することもでき る。即ち、例えば図2の実施態様において、空気あるいは高圧空気もしくはその 他のガスを混合ゾーンに供給するための4番目の供給チャンネルを配置してもよ い。加圧空気はスラリーと同様にして中央軸供給チャンネル61を通り注入できる 。補助供給チャンネルは使用しない場合、一時的あるいは永久的に封印すること ができる。凝固ゴム反応器の凝固ゴムゾーン52は、予定される応用目的に向けた 設計主旨に沿って選択される輔長を有する第一部分64を有している。場合によっ ては、凝固ゴムゾーンはこの軸長の全域あるいはほぼ全域にわたり一定の断面積 を有することもできる。例えばこの様な凝固ゴム反応器では、湿合ゾーンから排 **山端までは単純を直線的な管形態の送液チャンネルから構成される。しかし、土** 記に論じた理由ならびに好適な実施態様に示した図に見られる様に、凝固ゴムゾ ーン52の断面積は入り口端66から排出端68に向かって漸次的に増加することが好 ましい。より詳細には、断面積は入り口端から排出端に長軸方向に従って増加する。図2の実施態様の如く、凝固ゴムゾーンの断面積は一定断面積部分64に続いて、先に向かって連続的に大きくなる。凝固ゴム反応器(あるいは、より適切には凝固ゴム反応器内に規定される凝固ゴムゾーン)とその他の構成体の直径と断面積については、特記しない限り開放型流路の断面積とその出該流路の内直径を意味することとする。

エラストマー成分、特にマスターバッチクラム72である凝結した。

エラストマーラテックスは凝固ゴム反応器48から分流器70を通り放出される。分流器70は放出端68で凝固ゴム反応器に調整可能を状態に取り付けられている。この供給器は、エラストマーマスターバッチクラム72を選択的に各種受け取り部位に通す様に調整できる。この特性は、例えば試験のためや、工程の初期不安定から一次的に不良製品が生じた場合の製造作業開始時に、製造物の流れからマスターバッチクラムを射率的に除くのに有利である。さらに、分流器は凝固ゴム反応器から製造物を各種の後加工路に分流できる様柔軟に設計されている。図1の好適な実施態様では、凝固ゴム反応器48から放出されるマスターバッチクラム72は分流器70を通り乾燥機40に受領される。

凝固式ム反応器48の断面の寸法は入り口端66と放出端68の間の角度αに治って 増加する。角度αは0°より大きく、当該好適実施態様では45°以下であり、よ り好ましくは15°以下であり、最も好ましくは0.5°から5°の間である。角度 αは、緩固ゴムゾーンの中央長軸から凝固ゴム反応器の端にある凝固ゴムゾーン の外周上の点Aまでに測定された角度の半分になる。この点については、凝固ゴ ム反応器の上流部分の断面積、即ち入り口端66近份部分は、上記の原則に則り少 しずつ広げて凝固ゴム体が準型取りされることが好ましい。凝固ゴムゾーンでの 角度の広がりが大きすぎると、エラストマーマスターバッチが所望される小球状 あるいは螺旋状のクラムとして製造されず、凝固ゴム反応器内にただ噴霧されて しまう。凝固ゴム反応器の内径の広がりがゆっくり過ぎると、特定の実施態様で は供給物が逆流したり計まったりし、さらに反応産物が混合へッド内に入ってし まうことがある。ラテックスが実質的に凝結し、流れがプラグ流に変わっていく 疑問ゴムゾーンの下降流部分では、凝固ゴムゾーンの断面積を大きくしながら、 あるいは変えないまま伸ば

すことができる。即ち、好適実施態様で参照している先に向かってその断面積が 大きくなる凝固ゴムゾーンは、流れが実質的にプラグ流ではない凝固ゴムゾーン の部分と理解すべきである。

凝固ゴムゾーンの断面積(即ち、上記に論じた如く少なくともその上昇流部分 では)は図2の実施逓様に描写した如く連続的に増加するのではなく、むしろ多 段階的に増加するだろう。図3に示した実施銭模では、本明細書開示の方法と装 置を用いたエラストマーマスターバッチ製造のための連続フローシステムには、 凝固ゴムゾーンの断面積が多段階的に増加する混合ヘッド/凝固ゴムゾーンアッ センブリーが含まれている。この様な多段階の実施態様に於ける疑問ゴムゾーン の個々の区分は隣り合う断面と滑らかに接続していることが好ましい。これによ り、そうでない場合には隣り合う区分間で直径が不連続あるいは断続的に増加す るのに対して、滑らかで連続的な凝固ゴムゾーン面が形成される。図3の凝固ゴ ムゾーンは3段階で広がっており、4つの異なる区分あるいはサブゾーン74-77 がある。先述の設計原則に則り、凝固ゴムゾーン53の断面積は入り口端66から排 出端68上の点Aにかけて、凝固ゴム反応器の上昇部分で必要とされる流れの調整 が可能な全体角を成しながら増加している。第一区分74には(1)混合ゾーンの 直下流にある混合ヘッド50の定直径部分、入り口端66の接続部54に接続している 同一あるいは同様の直径部分を有する部分である。この第一区分は一定断面直径 Diと輔寸法あるいは輔長工を有する。この第一区分74では、長さTiは直径Dの 3倍以上でなければならず、より好ましくはDiの5倍以上、最も好ましくはDi の12倍から18倍以上である。各連続する区分は一定の断面直径と、前(即ち上流 )の区分の断而積のおよそ2倍の断而積を有することが望ましい。即ち、例えば 、区分75は一定の断面寸法と、区分74の断面積の2倍の断面積を有している

。同様に区分76の断面積は区分75の断面積の2倍であり、また区分77の断面積は 区分76の断面積の2倍である。各区分75 77では、長さは直径の3倍以上である ことが好ましく、より好ましくは3から7倍であり、通常はおよそ5倍である。 即ち、例えば、区分76の長軸方向寸法1.3は直径1.305倍以上であることが好ましい。

図3の実施態様に対応する混合ヘッドと凝固ゴムゾーンアッセンブリーを図4 に一部断面の形に示す。混合ヘッド50は接続部54を介して凝固ゴムゾーンの突出 部53に一体化している。これが複数の供給チャンネル60、61、62が、突出部53内 の凝固ゴムゾーン部分と実施的に同軸であり、細長い実質的に円筒形であるチャ ンネル60と結合部を形成する混合ゾーンを規定している。これが本発明開示の方 法と裝置を操作する上で、そして/または混合ゾーンの境界線を正確に規定する 上で、そして/又は凝固ゴムゾーンの境界線を正確に規定するうえで必須ではな いことが認識されるだろう。本開示により利益を受ける当業者に明らかなように 、供給チャンネル結合域の設計については様々な変形が可能である。この点につ いては、通常の好適ガイドラインの如く、例えば図4に示す型の実施態様では、 スラリーチップ67は円筒部分80の開始部上流に位置することから、供給チャンネ ルの結合部内では縦方向のほぼ中央部となる。この様な実施態様では、スラリー チップ67から円筒部80の開始部の円周部から仮想される円錐によって規定される 最小梅断面積が、ラテックス供給チャンネル60の構断面積よりも大きいか、少な くとも等しいことが好ましい。チャンネル80と少なくともエラストマーラテック スが実質的に凝結完了する前の乱流が発生する凝固ゴムゾーンの上流部分につい ては、共に円形の断面を有していることが好ましい。

カーボンブラックスラリー又はその他の微粒子充填剂液を供給する装置は、凝固式ムゾーンに向かって開口している開口部分又はス

ラリーノズル67に向かって延びる、混合チャンバーと実質同軸である供給管82から成る。この装置は本書記載の好適実施例の極めて有益な特徴の一つである。上記の好くラチックスの供給速度に比べるとカーボンブラックスラリーは極めて早い速度で混合ゾーンに送り込まれることと、小内径の供給管82の軸配置により、効果的な乱流が発生する。チャンネル82の直径D(上記の如く、凝固ゴムゾーンの区分74に続く部分の直径D」に実質等しいことが好ましい)はスラリー供給管8

2の内径の2倍以上あることが好ましく、より好ましくは供給管82の内径のおよ そ4から8倍であり、典型的にはおよそ当該内径の7から8倍である。供給管82 は混合ヘッド50の供給チャンネル61の上流端にある入り口と液体上密着シールを 形成している。軸供給管82の直径は、大まかには必要とされる容積湍速とスラリ ーノズルチップ67を通り混合チャンバー内に入る時のスラリーの軸方向速度から 決定される。正確な、又は必要とされる容積と速度は本発明開示により利益を受 ける当業者により容易に決定することができ、そして一部は材料濃度と種類の関 数となるだろう。本書に示し、また開示した実施態様では、カーボンブラックス ラリーを除去することができ、異なる時間に各種のマスターバッチ組成を製造す る場合に望まれる柔吹性を提供する。あるいは製造作業に用いた供給管は取り外 して、その後に行う別の製造に適した内径のより大きな、又は小さな管と交換す ることができる。スラリーが供給管を出る時の圧と速度の観点より、混合ゾーン 内に噴霧あるいはジェットすることが好ましい。このことは、少なくとも特定の 実施態様に於いては本質的に既に液体が充満している域内にスラリーを高速で注 入することを意味すると解釈できる。即ち、このことはスラリーノズルチップを 通過させる様に急速に分配するスプレーのことであり、必ずしも単純な散布帆道 に物質滴を自由飛行させるということを、

#### 意味しない。

追加の供給チャンネル60と62はそれぞれ供給チャンネル60と下流チャンネル80と角度βで結合部84、85を形成する。角度βは多くの実施態様では0°以上、18 0°以下の値を有する。典理的にはβは例えば30°90°である。スラリーノズルチップ67に存在する高速スラリーに伴う際圧、即ちラテックス流のキャビテーションは、一分を混合を妨げ、その結果不良なマスターバッチを生じる不利益の原因となることから避けることが望ましい。空気もしくはその他の気体を注入もしくはその他の方法により混合ゾーン内に供給することで上記の様な真空状態の破綻を助けることができる。更に、供給チャンネル60の入り口86に導かれる天然ゴムラテックス用に拡張した供給ラインは、ラテックス被貯留槽として機能することが望まれる。図4の好適実施例では、ラテックス供給チャンネル60はスラリ

ーノズルチップ67に接する混合ゾーンと交差している。しかし、ラテックス供給 デャンネルは混合チャンネル上流もしくはスラリーノズルチップ67の下流を構切 ることもできる。

カーボンブラックスラリーあるいはその他の微粒子充填削液はおよそ300psig以上の圧、およそ500から5000psigといった圧、例えば1000osigで供給ライン82に送られる。好ましくは液状スラリーはスラリーノズルチップ67を100ft/秒の速度以上で、好ましくはおよそ100からおよそ800ft/秒、より好ましくはおよそ200から500ft/秒、例えばおよそ350ft/秒の速度で通過して混合ゾーン内に供給される。図4の欠印51は、スラリーノズルチップ67下のチャンネル80に入る供給ライン60と62を通るエラストマーラテックスと補助供給物質の一般的な流れを示している。即ち、スラリー液とラチックス液は上記に記した様に大きく異なる流速で混合ゾーン内に供給される。理論化するものではないが、現在のところこの供給差

により良好なマクロ分散と凝結をもたらすラデックスせん断条件が混合ゾーン内 に整うと理解される。

図5と6には別の好適な実施態様が示されているが、この例では図4の実施態様の単軸供給管82が複数の軸方向に伸びた管90 92に替わっている。供給管の数はもっと多く、例えば軸方向に伸びた供給管の数をおよそ6あるいは8本にすることもできる。異なる処方の製造を行うための直径が異なる多様な供給管を用いることは、製造に於ける柔軟性に利点がある。また、複数の供給管を用いることで、疑問ゴム反応器内の混合ゾーン内と凝固ゴムゾーンの両方で良好な乱流を同時に得ることができる。

図7には混合ヘッドの別の実施態様を示す。混合ヘッド150は混合ゾーン179を 規定している。単軸供給チャンネル161はカーボンブラックスラリー又はその他 の微粒子充填剤液を高速で混合チャンバー179内に供給するのに適した供給管182 に接続している。供給管182中央部の中ぐり孔はスラリーノズルチップ167で終わっている。スラリーノズルチップ167の直ぐ上記は定直径ノズル部分168であり、より大きな中ぐり孔域169に継がっている。定直径ノズル部分168の軸長は直径の およそ2から6倍であり、例えばおよそ5倍であることが好ましい。第二供給チャンネル160は混合ゾーン179と90°の角度で接続部184を形成し、混合ゾーン内にエラストマーラチックス液を送り込む。ラチックス液供給チャンネル160の横断面直径はスラリーノズルチップ167や定直径ノズル部分168の横断面直径に比べて十分大きい。理論化する意図はないが、ノズル部分168の上流の中ぐり孔部分の直径を広げながら軸方面にノズル部分を何ますことが、供給管182を通り混合ゾーン179内に入るスラリーの流れの安定化に有益であると思われる。供給管182の中ぐり孔は20°で面取りされた時に良く機能すると思われ、即ち円錐部分

169は上流方向に向かっておよそ20°の角度で広がっている。混合ゾーン179の下流は仲長した凝固ゴムゾーンである。上記の原則により、この凝固ゴムゾーンは 僅かに仲長する必要がある。即ち、その仲長は直径に比べて僅かに長い必要があ る。しかし、段階的に仲長していく凝固ゴムゾーンを用いることが好ましい。

上記の如く、エラストマーマスターバッチの凝結は凝固ゴム反応器末端で、あるいはその前で実質終了する。則ち、凝結は凝固ゴム反応器の凝固ゴムゾーン内で起こり、凝結液等を追加して流し込む必要はない。このことは必ずしも初則疑結が混合ゾーン内で始まることがある可能性を除外するものではない。混合ゾーンは、凝結が起こる凝固ゴムゾーン外部分と見なすことができるだろう。また、エラストマーマスターバッチが凝固ゴム反応器を止る前に凝結を実質終了するということは、その後の工程ならびに追加処置段階の可能性を除外するものではない。この点について、本発明開示の新規方法による天然ゴムラテックスを対象とする好適な実施態様では、実質的な凝結終了ということはラテックスのゴム炭化水素のおよそ95重量%以上、より好ましくは97重量%以上、最も好ましくは99重量%以上が凝結することを意味している。

本明細書に開示、記載された方法と装置は優れた物理特性と性能を有するエラストマー複合体を作る。本発明の新規エラストマー複合体には、上記に開示した方法と装置により作られるマスターバッチ配合物に加えて、そのマスターバッチ配合物から得られる中間化合物や最終製品も含まれる。特に、エラストマーマスターバッチは天然ゴムラテックス(ラテックス濃縮液もしくはフィールドラテッ

クス)を、優れた物理特性と性能を有する各種等級のカーボンプラック充填剤と 共に利用して製造することができる。

現在、タイヤ処理等広く市場応用されているカーボンブラックだ。

けでなく既存の装置と方法では市場応用に不適とされるカーボンブラックについても十分に利用できる。表面積が大きく、ストラクチャーが小さいために通常のカーボンブラックに求められる市場条件では十分なマクロ分散ンベルが得られず、また/あるいはエラストマーの分子量が一定に保てないために応用不適とされるカーボンブラックも、本発明開示の新規な弾性マスターバッチ配合物には非常に適している。この様なエラストマー複合体は天然ゴム中のカーボンブラックの分散に優れており、また天然ゴムの分子量の保存にも優れている。さらに、これらの利益を処理タンクあるいは酸性液あるいはその他の凝結剤の液流を含む凝結工程を必要とせずに得ることができる。即ち、凝結処理のコスト高と複雑化を同識できるだけでなく、作業から液流操作も除かれる。

既知の乾燥素練り技術では、大きな分子量分解無しにこの様な充填剤の均一分散体を得ることはできず、従って本発明の好適な実施強様に示す新規な天然ゴムマスターバッチ配合物を製造することはできない。この点について、カーボンブラックがストラクチャー対表面積比DBPA:CTABが1.2未満、そして1.0未満で天然ゴムが高分子天然ゴムである場合でも、新規なエラストマー複合体は優れた天然ゴム中でのカーボンブラックのマクロ分散を有していることが示されている。既知是合技術では、天然ゴムの分子量分解無しにこの様な優れたカーボンブラックのマクロ分散を得ることはできず、従って新規なマスターバッチ配合物やその他の本発明のエラストマー複合体を製造できなかった。本発明開示による従来得られなかったカーボンブラックのマクロ分布を有する好適な新規エラストマーマスターバッチ配合物は、マクロ分散に劣る既知マスターバッチの替わりに利用することができる。即ち、本発明開示のマスターバッチは、公知技術を利用して加流成分内に取り込ませることができる。

この新規な加硫化合物は好適な実施態様において、マクロ分散に劣るマスターバ

ッチから成る対応する加硫化合物と通常は同等、有る場合にはそれ以上の物理特性ならびに性能を有している。しかし、本発明では、混合時間、注入エネルギー、ならびに/又はその他のコストを軽減してマスターバッチを製造することができる。

特に特定の好適な実施態様では、天然ゴムラテックスとカーボンブラック充填 剤マスターバッチを優れた物理特性と性能を持った状態で製造することができる 。 非常に表面積が大きく、ストラクチャーが小さいカーボンブラックを利用した 場合でも、同程度のカーボンブラック分散を乾燥素練りで得る時起こる、長時間 、強い力が原因の天然ゴムの分解無しに優れたカーボンブラックのマクロ分散を 得ることができる。この点に関して、ストラクチャーと表面積比、DBPA:CTABが 1.2未満のカーボンブラックを利用して、そして1.0未満のカーボンブラックを利 用した場合でも、高い分散度をえることができる新規な天然ゴムマスターバッチ 組成は特に有益である。本例での如く、カーボンブラックストラクチャーは、AS TM D2414記載の方法により、カーボンブラック100グラム当たりのDBPA立方セン チメーターで衰されるジプチルフタル酸塩吸着量(DBPA)として測定することが できる。カーボンブラック表面積はASTM D3765 - 85記載の方法により、カーボン ブラックエグラム当たりの平方メーターとして表されるCTABとして測定すること ができる。従って、新規な天然ゴムマスターバッチは、従来不可能であった分子 量分布や充填部分散レベルの様な物理特性の組み合わせや/又は従来不適であっ た非常に大きな表面積と小さなストラクチャーを持ったカーボンブラックの様な **弁填剤を取りいれることが可能となった。本発明開示の方法と装置により製造さ** れた天然ゴムマスターバッチの分散特性は公知の硼。」 (平均重量) とマクロ分 散により示すことができ

る。具体的には、好適な実施態様により製造されたマクロ分散レベルは乾燥素練りで製造されたほぼ同じ**層**のを持つマスターバッチに比べて明らかに優れている。最も大きな特徴は、これらの好適な実施態様の分散の質がカーボンブラック充填剤の形状に大きく依存しないことである。本発明開示の方法と装置を用いて得ることができる分散のレベルに影響するその他のファクターとしては、スラリ

ー中のカーボンブラックの濃度、スラリーに注入した総エネルギーと液体流の混合中に注入したエネルギー等がある。

本発明開示の天然ゴムマスターバッチ中のカーボンブラックのマクロ分散の質は、およそ同じMMs。」(重量平均)を有する既知のマスターバッチに比べて明らかに優れている。新規なエラストマー複合体の好適な実施態様では、従来達成できなかったフィールドラッテクス状態にある天然ゴムとほぼ同等のMMs。」で(例えば、およそ1,000,000)優れたカーボンブラック分在を得ることができる。この優れた分散特性はストラクチャーが小さく、大きな表面積を有する、例えばDBPAが110cc/100g未満で、CTABが45~65m²/gを超え、DBPA:CTABが1.2未満であり、好ましくは1.0未満であるカーボンブラックを用いた上記の好適な実施態様で特に顕書である。

### 実施例

## 試験方法

以下の実施例ならびに比較では次の試験方法を用いた。

1. 結合ゴム:重量0.5g ± 0.025gのサンブルを秤量し、100mlのトルエンの入った密閉プラスコに入れて室温でおよそ24時間保管する。それからプラスコ中のトルエンを新しい100mlのトルエンと取り替えてから 4 日間保管する。その後、サンプルを溶媒から取り出し、プードの下におき24時間、室温で風乾する。それからサン

プルをさらに室温で24時間、真空下において乾燥させる。乾燥後、サンプルの重量を測定し、減量データから結合ゴム量を計算する。

- 2. MWs.or: 本発明開示ならびにクレームでの使用の如く、MWs.or無天然ゴムの ゾル部分の平均分子量を意味している。分子量測定の標準的なGPC法は次の手順 に従い行う:
  - 2、 1 Polymer Laboraotries、UK往製の10 $\mu$  m 106オングストロームカラム 2本、10 $\mu$  m 500オングストロームカラムエ本、10 $\mu$  m混合ベッドカラムエ本を用意する。
  - 2. 2 紫外線検出は215nmで行う。

- 2. 3 溶媒はテトラビドロフラン (THF) を用いる。
- 2. 4 濃度は通常2mg/ml THF。
- 2. 5 サンプルをTHF内に3日間放置し溶解し、BHTで安定化する。
- 2. 6 溶液を遠心分離してゲルと上澄に分け、上澄をカラムにかける。
- 2.7 サンプル調整 サンプルはゾル濃度が0.5~0.05重量%の範囲になり、分子量分布を正確に測定するため良好な検由器応答を得るように工夫されている。使用する充填剤別に、次の式を用いてサンプル重量を補正する:

サンプル重量= (100±使用充填剤(phr))。 20/100mg=/-2 mg

サンプルをUV遮断バイアル内に入れて、4mLの安定化チトラヒドロフラン (THF) を含む0.02%ブデル化ヒドロキシトルエン (BTH) で3日間溶解する。溶解工程から大部分のゾル部分を含む上澄をデフロン製遠心チューブに移し、Avanti30 (Beckman) 遠心分離装置を用いて60分間、26,000回転/分(最大重力加速度57,500gに相当)で遠

心分離する。この重力加速度では、ゲル相の大部分が沈殿するために ゲルーフリーの上滑を得ることができる。このゲルーフリー液を1: 5に希釈して、再度THFで安定化する。この時点でサンプルをGPCバイ アルに移し、Waters717自動サンプル装置(Water Corporation、Milf ord、Massachusetts、USA)内に大れてGPC試験のための調整を行う。 分子量決定 続いて、ゾル部分の重量平均分子量MMs。」を決定する。 Milleniumソフトウニアーを利用して(Waters Corporation、Milford 、Massachusetts、USAより入手できる)、15分と35分の時間増分範囲 の谷一谷(valley-to-valley)モードによりベースラインを決定した 。この時間増分は、移動相流速を0.75mL/分とした上記パラグラフ2 、上記載のカラムに適している。納得いくベースラインが得られたら 、次に分布を決定する。溶出時間を分子量に変換する。市販の標準物 質(EasiCal Polymer Laboratories、U.K.)から作製したボラスチレ ン液を用いて、極めて狭い分子量分布を持った各種の分子量シリーズを含む形で調整した。ボリスチレン分子量からボリイソブレン分子量当量への変換は、Benoitと共同研究者らの一般計算法に基づき行う。流体力学半径は分子量と固有の粘度の積に比例する。ボリスチレン分子量をボリイソブレン当量に変換した後、キャリブレーション曲線から絶対分子量と溶出時間との関係を導く。標準物質をサンブルと同一条件下に流し、標準物質データとの最適合に基いて、特定の溶出時間について分子量を削り付ける標準物質を得る。一度分布に基づいて時間から

分子量への変化があった後はWaters milleniumソフトウエアーにより 適当な分子量平均が計算される。

- 3. Mooney粘度:標準的操作法は肌(Ⅰ-4)@100℃に従い行う。
- 4. 試験サンプル加硫条件:試験片を下記時間150℃において加硫した:
- 4. 1 拡張シート:20分
- 4.2 レジリエンス:**23**分
- 4.3 硬度
- 4. 4 発熱性: 25分
- 5. 分散: Cabot分散チャート法を用いた50×顕微鏡写真による主観評価(AST M D2663法)
- 6. 応力一歪み:**B5903**:A 2 と**15037**で試験した。
  - 7. 硬度:IS048(1994)、温度23℃で試験した。
- 8. レジリエンス:B5903:A 8 (1990) 、方法 A 、温度23℃ (8 mm)前取り円 盤試験片) で試験した。
  - 9. 発熱性: ASTM D623、方法Aで試験した。
  - 9. 1 開始温度:23℃
  - 9. 2 静荷重: 241bs
  - 9. 3 ストローク: 0.225インチ
  - 9. 4 周期:30Hz

#### 9.5 試験時間30分

10、tan る: Rhoometriesをモデル RDSID で測定。報告値は最大 ひずみ湾曲値である。() 、30°、60°、 1Hz、0.1%から60%でのひずみ湾曲。。

11. 角裂生長抵抗: ASTM D3629 94に従い測定

## 実施例A

エラストマーマスターバッチは本発明に従い作製した。具体的には、エラストマ・マスタ・バッチはCabot Corporationより入手可能な市販等級N234のカーボンブラックから成る52.5phr充填剤とマーレシア産の標準的な天然ゴムフィールドラテックスより作製した。天然ゴムフィールドラテックスの特性を下記表した示す。

表1 天然ゴムラテックスの特性

添加物	。 % <b>乾</b> 燥	% <del>&amp;</del>		菜窒	揮発性	NI(1)4)
	J'A	固形物	%灰分	ppm	脂肪酸	@100C
0, 15%HNS*	28, 4	34, 2	0,38	0,386	0, 052	68
0, 3%NH3						
ZnO. TMTD*	! i					

a HNS:ビドロキシアミン中性硫酸塩、Mooney粘度安定化剤。

b ZnO/TMTD: 生物学的保存初として使用、延常は0.025%、1

:1の混合物

完全な化合物配合を下記表2に示す。また代表例としては加硫中の加硫もどり に優れた抵抗性を有することが知られている市販のトラック用トレッドタイヤが ある。

表2 マスターバッチ組成

<u>成 分</u>	<u> </u>
tř I <sub>N</sub>	100
カーポンブラック	<b>52.</b> 5

Zn0		
ステアリン酸		
6 PPD (酸化防土剂)		

耐光性改善剤(ワックス)

2. 0 2. 0

4.0

2.0

EnneFlex74(芳香油) 3. 0

台 計 165.5

エラストマーマスターバッチ製造装置は、本質的には前記図1と子記載の装置に同じである。スラリーノズルチップ(図子の参照番号167)は0.2インチの軸長を有する直線部(図子、参照番号168)を持つ直径0.039インチのものである。凝固ゴムゾーンは直径が0.188インチで、混合ゾーンからその出口までは定直径でその軸長は0.985インチである。マスターバッチの調整の詳細を以下に示す。

1.カーボンブラックスラリーの調整。撹拌器を備えたカーボンブラックスラリータンクの中でカーボンブラックのバッグを焼イオン水と混合する。撹拌器によりベレットは断片化され、12.5重量%のカーボンブラックを有する粗いスラリーが形成される。作業中、このスラリーを連続的に空気隔膜ポンプを用いて汲み上げて最初の分散のためにコロイドミルに送り込む。続いてスラリーは先送りキャビティーボンプによりホモジナイザー、具体的にはAPV Gaulin、IncのM3ホモジナイザーに送り込まれる。ホモジナイザーにより滑らかに挽かれたスラリーができる。ホモジナイザーから混合ゾーンへのスラリー液の流速はホモジナイザーの速度により設定され、ホモジナイザーは高陽圧交換ボンブとして機能する。速は Micromotion®マスフローメーターを用いてモニターする。カ

ーボンブラックスラリーは50から100psigの範囲の圧でホモジナイザーに供給され、そしてホモジナイゼーション圧は4000psigに設定されるため、結果としてスラリーは混合ゾーン内に4.1~4.41b/分の流量と、およそ130ft/秒の速度で吹き込まれる。

2. <u>ラテックス供給</u> ラテックスは**100**ガロンの加圧供給タンクに注入された。 。注入するまえにラチックスには酸化防止乳剤を加えた。酸化防止剤は**0.3phr**の トリスプニルフェニル亜リン酸塩(T**NPP** 

- ) と 0. 4phr Santoflex ® 134(アルキル アリルゥ フェニレンジ アミン混合液)から成るものを加えた。各酸化防止剤は、酸化防止剤100に対し て3の割合にオレイン酸カリウムを加え、水酸化カリウムでpHをおよそ10に整え た15重量系乳剤として調整した。また、3 phr増量油も加えた。空気圧(51psig )を利用して供給タンクからラテックスを凝固ばム反応器の混合ゾーン内まで移 動させた。ラテックスの流速は3. 2から3. 41bs/分とおよそ3.8フィート/秒で
- あり、 Micromotion®マスソローメーターとゴム製チューブピンチ バルブにより自動的に計測、調整された。カーボンブラックスラリー供給速度に 対するラテックス供給速度比を適切に維持して、所望されるカーボンブラック配 合量52.5phrを得た。
- 3. <u>カーボンブラックとラチックス混合</u>。カーボンブラックスラリーとラチックスは、ラチックスをカーボンスラリー内に加えて混合した。作業中はカーボンブラックをラチックスと機能した混合物に充分に混合した。柔らかい、湿ったスポンジ状の凝固ゴムの"ワーム(螺旋体)"が凝固ゴム反応器から出てくる。
- 4. <u>腕水</u> 凝固ゴム反応器から放出された湿ったクラムのおよそ79%が水である。湿ったクラムは脱水押出し器(The French Oil Mill Machinery Company、直径3.5インチ)により湿潤度およそ5~10%に脱水される。押出し器内で、湿ったクラムは圧縮されクラムより水が絞り出されて、押出し器のドラムのスロットから出てくる。
- 5. 乾燥と冷却。脱水されたクラムは第二押出し器内に落下し、再度圧縮、加熱を受ける。クラムが押出し器のダイブレートを通り炸裂する時に水も飛散する。生成物の押し出し温度はおよそ300° Fで、水分含有量はおよそ0.5~1 重量%であった。熱い、乾燥したクラムは、空気圧で振動するコンペヤーによりおよそ100° Fまで急速に冷却した(およそ20秒)。得られた乾燥したクラムはおよ

そ66.0重量%の固形ゴムとおよそ33.0重量%のカーボンブラックを含んでいた。 |実施例 B

対照のマスターバッチを乾燥素練り法を用いて調製した。対照は天然ゴムがラ テックスではなくSMR10であること以外は実施例A(前記表2参照)と同一成分 から調製した。これは10phrのカーボンブラックを用いて50rpmで000 Banburyミキサー(およそ 3 kg)中でゴムを素練りして調整した。素練りはおよそ 3 分間行い、合計800MJ $\angle$  m³ であった。

## 実施例Aと実施例Bの比較

実施例Aのマスターバッチならびに実施例Bの対照マスターバッチは00C Banburyミキサー中で2段階の混合操作を行いそれぞれ混合された(およそ3kg)。下記表3に、第一段階の混合手順を示す。実施例Aのマスターバッチでは混合手順に変更あることが分かる。

時間 実施例A 実施例B (<del>//</del>) 乾燥混合対照 0, 0 全ての成分 奏練り前のゴム カーボンブラックと油 0, 5 1.0 掃引 残留成分 1.5 2. 0 2, 5 掃引 3.0 X およそ 700NJ/m \* で およそ 1.000MJ/m " で 放口 放出

表3 第1段階混合手順

第二段階では、下記表4に示す加硫剤を500MJ/m3の混合サイクルにて加えた

表 4 最終段階加備卻添加

<u>成 分</u>	<u>重量比</u>
第1段階配合物	165. 5
Goodyear Winstay 100 (酸化防止剂)	1.0
TBBS(イオウ促進剤)	1.8

(63)

即ち、実施例Aのマスターバッチの混合に必要なBanburyの混合エネルギーは実施例Bの対照材料を素練りし混合するのに必要なBanbury混合エネルギーのおよそ53%であった。投入エネルギーが少なくなる一方で、実施例Aの材料は極めて良好なマクロ分散を示し、またそのゾル部分の分子量(重量平均)MMs or も対照のそれに比

べ有意に高かった。これらのデータを下記表もにまとめた。

混合エネルギー(MJ/m³) - MJ (1±4, 1000) | サンブルモ |素練り前:第一段階||最終|| 合計 ||第1段階||最終||平均分了量| 実施例A 694500 1, 194:102 **7**2 444, 900 500 実施例B: 2, 265 92 37 800 -965327,000

表5 混合ならびに加強データ

加硫(エージング無し)した実施例Aと対照材料についての追加試験の結果を下記表6に示す。

・サンプル・硬度 100%モジュラス 300%モジュラス 引張強さ (MPa) (MPa) (MPa) 実施例A 71 2, 82 28. 7 16.1実施例B 72 3, 12 16.228.5サンプル 破断時伸び レジリエンス|発熱性| 展大 tan δ 30℃ (%)(90)00 実施例A. 526 56. 5 70. 5 i 0. 203 0.2400.290実施例B 76, 5 ! 0, 206 0.23651157, 6 0,286

表 6 追加試験データ

## 実施例 ()

エラストマーマスターバッチは本発明に従い作製した。具体的には、エラスト

マーマスターバッチはCabot Corporationより入手町

能な声販等級 Rogal® 660のカーボンブラックから成る55phr 充填 剤とマーレシア産の標準的な天然ゴムフィールドラテックスより作製した。配合 組成(少量通常使用するラテックス添加物は除く)を下記表7に示す。

表7 マスターバッチ配合

<u>成 分</u>	重量比
##Z\	100
カーボンブラック	55
Santof Lex 134(酸化防止剂)	0.4
TNPP(酸化防止剂)	0.3
台 計	155.7

エラストマーマスターバッチ製造装置は本質的には前記図1、3と7記載の装置に同じである。スラリーノズルチップ(図7、参照番号167参照)は0.2インチの軸長を有する直線部(図7、参照番号168参照)を持つ直径0.025インチのものである。凝固ゴムゾーン(図3、番号53参照)は直径0.188インチ、軸長およそ0.985インチの第一部(一部混合ヘッド内に、また一部がそれに密着した突自部内にある):直径0.266インチ、軸長1.6インチの第二部、直径0.376インチ、軸長2.256インチの第三部;および直径0.532インチ、軸長3.190インチの第四部から構成されている。さらに、それぞれの部分を接続している同軸の短い平滑な部分がある。マスターバッチの調整の詳細を以下に示す。

1. カーボンブラックスラリーの調整。撹拌器を備えたカーボンブラックスラリータンクの中でカーボンブラックのバッグを焼イオン水と混合する。撹拌器によりベレットは断片化され、14.9重量%のカーボンブラックを有する粗いスラリーが形成される。この粗スラリーはパイプライングラインダーにより再循環される。作業中、このスラリーを連続的に空気隔膜ボンブを用いて汲み上げて最初の分散のためにコロイドミルに送り込む。続いてスラリーは先送りキャビティーボンプによりホモジナイザー、具体的にはMicrofluidics International CoporationのMicrofluidizerモデルM210を用い

て、加圧し、せん断して滑らかに挽かれたスラリーができる。このマイクロ送液 装置から混合ゾーンへのスラリー液の流速はマイクロ送液装置の速度により設定 され、マイクロ送液装置は高陽圧交換ボ

ンプとして機能する。スラリーの流遠は Nicromotionをマスソローメーターを用いてモニターする。カーボンブラックスラリーはおよそ130psigの 圧でマイクロ送液装置に送られ、アキュムレイターでの排出圧が450psigに設定されているのに対して、アキュムレイターへの排出圧が3000psigに設定されるため、結果としてスラリーは混合ゾーン内におよそ3.91h/分の流量と、およそ300ft/秒の速度で吹き込まれる。

2. <u>ラテックス供給</u> ラテックスは55ガロンの加圧供給タンクに注入された。 注入するまえにラチックスには酸化防止乳剤を加えた。酸化防止剤は**0.3phrのト** リスノニルフェニル重リン酸塩(TNPP)

と 0. 4phr Santoflex® 134(アルキル アリル p フェニレンジ アミン混合液)から成るものを加えた。各酸化防止剤は、酸化防止剤100に対して4の割合にオレイン酸カリウムを加え、水酸化カリウムでpHをおよそ10に整えた40重量%乳剤として調整した。ペリスタリックポンプを利用して供給タンクからラテックスを凝固ゴム反応器の混合ソーン内に移した。ラテックスの流速は3.2~3.31bs/分とおよそ3.9フィート/砂であり、Endress—Hauser(Greenwood,Indiana、USA)マスフローメーターを用いて計測した。カーボンブラックスラリー供給速度に対するラテックス供給速度比を適切に維持して、所望されるカーボンブラック配合量55phrを得た。

3. <u>カーボンブラックとラテックス混合</u>。カーボンブラックスラリーとラテックスは、ラテックスをカーボンスラリー内に加えて混合した。作業中はカーボンブラックはラテックスと機能した混合物に充分に混合した。柔らかい、湿ったスポンジ状の凝固量ムの"ワ

## 一厶(螺旋体)"が凝固ゴ厶反応器から出てくる。

4. <u>腕水</u> 凝固ゴム反応器から放出された湿ったクラムのおよそ78%が水である。湿ったクラムは脱水抑出し器(The French Oil Mill Machinery Company、

直径3.5インチ)により湿潤度およそ12~13%に脱水される。押用し器内で、湿ったクラムは圧縮されクラムより水が絞り出されて、押出し器のドラムのスロットから出てくる。

5. 乾燥と冷却。脱水されたクラムは第二押出し器内に落下し、再度圧縮、加熱を受ける。クラムが押出し器のダイブレートを通り炸裂する時に水も飛散する。生成物の押出し温度はおよそ280° F~370° Fで、水分含有量はおよそ0.3~0.4重%であった。熱い、乾燥したクラムは、空気圧で振動するコンベヤーによりおよそ100° Fまで急速に冷却した(およそ20秒)。得られた乾燥したクラムはおよそ66.0重量%の固形ゴムとおよそ33.0重量%のカーボンブラックを含んでいた。

#### 実施例DとE

2種類の対照のマスターバッチを乾燥素練り法を用いて調製した。用いた対照は、実施例DでのゴムがラテックスではなくRSS1 MRであること以外は実施例C(前記表子参照)と同一成分から調製した。実施例EのゴムはSMR10 MRである。それぞれ、ゴムをBR Banburyミキサーを用いて素練りして作製した。実施例Dのコムは118rpm、10分間で素練りした。実施例Eのゴムは77rpm、4分間で素練りした。

### 実施例C、D、Eの比較

実施例じのマスターバッチならびに実施例DとEの2種類の対照マスターバッチはBR Banburyミキサーを用いて混合した。下記表8に混合手順を示す。

#### 表8 混合手順

マスター	素練り前	第上段階混合	第日段階
バッチ			(最終) 施合
実施例C	<del>M</del>	無	BR Banbury
			77rom, 4.59}
実施例D	BK Banbury	BR Banbury	BR Banbury
	mixer118rpm	mixer 77rpm	77con, 4.5 <del>/3</del>
	105}	3 <del>5)</del>	<del>//</del>
実施例じ	BK Banbury	BR Banbury	BR Banbury
	mixer 77 <b>rp</b> m	mixer 77rpm	77rpn,4.5 <del>分</del>
	4 5}	8 <del>/)</del>	<del>//</del>

配合組成を下記表9に示す。

表 9 第日段階加硫剂添加

<u>成 分</u>	重量比
実施例4マスターバッチ、又は	
実施例5又は6の第1乾燥混合体	155
Azo 66(酸化亜鉛)	4.0
Hystrene 5016 (ステアリン酸)	2. 0
Santof Lex 13 (酸化防止剂)	2. 0
耐光性改善剤(ワックス)	2. 0
Wingstay100(酸化防止剂)	1.0
SantocureNS(イオウ促進剤)	1.8
<u>イオウ</u>	1.0
습 귀	168. 8

上記3種類の混合物は加備戻りも少なく、良好に加備された。投入エネルギーが少なくなる。方で、実施例じの材料は乾燥混合対照

に比べて極めて良好なマクロ分散を示し、またそのゾル部分の分子量(重量平均 ) MMs or も対照のそれに比べ有意に高かった。これらのデータを下記表10にまと めた。

表10 混合ならびに加硫データ

	実施例で	実施例 D	
  マスターバッチの特性	·	·	
Mooney社度	125	124	126
ML (1 + 4) @ 100C			
結合ゴム	50	32	44
(%)			
MWs. (×10)	0.678	0, 466	0.463
未分散面積 %	0, 12	1. 48	2. 82
(D%)		i	
配合物特性		·	
硬度	62	. 65	62
100%モジュラス	239	315	270
(ps;)			
300%モジュラス	1087	1262	1216
(psi)			
引張強さ	4462	1099	4344
(psi)			
伸び、%	675	591	600
最大 tan δ	0.189	0.237	0.184
②€0℃ (歪み湾曲)		i :	
魚裂生長速度	0.8	5. 0	5.8
(cm/100万回転)		·	

# 追加試験と比較

本発明の好適なエラストマー複合体は上記に開示した装置と方法により作製される。具体的には、新規マスターバッチ配合物は天然ゴムラチックスとカーボンブラック充填剤より形成され、同一あるいは同様の出発材料から形成された従来

配合に比べ極めた良好なマクロ分散及び/又は天然ゴム分子量を有する。図8に は、これら好適なマスターバッチ配合物に用いられた各種カーボンブラック充填 剤の表面積とストラクチャー、具体的には**ASTM D3765085**当たりのカーボンプラ ック1g当たり平方メーターとして示されているCATB表面積、とASTM D2414のカ ーポンプラック100g当たりのDBPの立方センチメーターとして表されたジブチル フタレイン酸塩吸収(DBPA)値が示されている。図8はカーボンブラックの異な る領域布によつに分けられると考えられる。領域上には低ストラクチャーで、表 面積が大きいため天然ゴムやその他の従来の乾燥混合法で用いられていたエラス トマー中への分散が最も困難であるカーボンブラックが含まれている。このため 、領域1のカーボンブラックはその他のカーボンブラックの様に広く市場で用い られてはいない。従来の乾燥混合法を利用して領域工のカーボンブラックから作 製したマスターバッチならびに加硫処置エラストマーは、マクロ分散が不良であ り、多くの場合欄。」も低い。領域目のカーボンブラックは領域工のものに比べ て高ストラクチャーを有している。通常、この領域にあるカーボンブラックは自 動車タイヤ等に用いられる天然ゴム内では良好な分散を示すが、長い間乾燥混合 すると天然ゴムのMWs at は大きく低下する。図8の領域111のカーボンブラックは そのストラクチャーに比して小さな表面積を有している。従って、このカーボン ブラックは乾燥湿合によって十分を天然ゴム内への分散を得る時に使用されてい るが、この場合でも不要の曜。この低下が起こる。

図8のこれら3領域のカーボンブラックの分散、具体的にはマクロ分散は木発明開示のエラストマー複合体の中では大きく改善され、好適な実施態様では天然ゴムのMMs。1も顕著に増加させることができる。

#### 対照サンブル 1 ー443

本発明のエラストマー複合体と比較することを目的に次の操作により乾燥混合 によるマスターバッチ対照サンプルの調整を行った。

#### 大然ばムの素練り

広範囲の分子量を持った乾燥マスターバッチを調整するために、市販天然ゴム (RSS1, SMR CV、とSMRI10) ベールを次の条件に従いBRバンブリーミキサーで前

素練込みした(充填係数:0.75):

表11 天然ゴム素練り条件

サンブル	素練り	ローター速度	冷却水	素練り時間
コード		(rpm)		(分)
M 1	14 ಓ			
M 2	あり	77	湯水	4
М 3	あり	118	漫水	6
M 4	あり	1-8	堀水	10

### 2. カーボンブラックと前素練り込み天然ゴムの混合

様々のレベルのマクロ分散値を持つ天然ゴム乾燥マスターバッチを調整するために、BRバンブリーミキサーで以下の様な混合作業を行った。充填係数は0.70であった。マスターバッチ成分と混合手順を下記図12に示す。

表12 天然ゴム乾燥マスターバッチ組成

成 分	phr !
	(ゴム重量 100に対する重量分量)
天然ゴム	100
カーボンブラック	下記参照
· 油	下記参照
Santofex (酸化纺止剤)	0. 4
TNPP (酸化防止剤)	0. 3
混合手順	
0分:前素練り込み天然	;ゴム(77cpm, 45C)を加える
1分:カーボンブラック	、油、酸化防止剤を加える

M 1 ~M 4 の前素練り込み天然ゴムサンプルを下記図13表に示すように様々な時間混合して、様々なマクロ分散ンベルを得た。例えば、サンプルコード表13のM2D1は、前素練り込み天然ゴムM 2 (上記、表11参照)を10分間、表12の成分と

混合して得た対照コントロールである。

表13 混合時間

乾燥NR素練り	前素練りNR	混合時間 ¦
サンブルコード		
M 1 D 4	M I	4
MIDS	1 M	6
M 1 D 4	M 1	8
M 1 D 1	M 1	10
M 2 D 4	M 2	4
M 2 D 3	M 2	6
M 2 D 4	M 2	8
M 2 D 1	M 2	10
M 3 D 4	М 3	4
мзрз	M 3	. 6
мзп2	М 3	8
M 3 D 1	M 3	:0
M 4 D 4	M 4	4
M 4 D 3	M 4	6
M 4 D 4	M 4	8
M 4 D 1	M 4	10

## 3. 天然ゴム素練り対照サンブルの最終混合

配合物の性能評価のために、表13の乾燥素練り天然ゴムマスターバッチ対照サンプルに、表14に示す方法に従って追加の成分を加えた。

表14 最終混合時の追加成分

 	量	
Azo 66 (酸化亜鉛)	4. 0	
Hystrene 5016(ステアリン酸)	2. 0	:
Santoflex 13 (酸化防止剤)	2.0	
耐光性改善剤(ワックス)	2.0	
Wingstay 100 (酸化防止剤)	0	
SantocureNS(イオウ促進剤)	1,8	
イオウ	1,0	

混合物は通常の加硫技術により、完全に加硫されるまで、通常は10~30分間15 0℃で加硫した。この点に関し、上記表14に示す方法も含めて同一あるいは実質同一であるの最終混合方法により、全ての対照サンプルならびに下記の方法により調整された全ての本発明のエラストマー複合体サンプルを混合し、加硫し、そしてその特性と性能について試験した。

以下に示す表15 23には、対照サンプル1~443のゾル分子量MMs or とマクロ分散 D(%)を示している。サンプルは使用されたカーボンプラックの種類により グループ分けされている。表中、サンプルは使用されている未然ゴムと加えられたカーボンプラックならびに油毎にグループ分けされている。表見出しは、標準的な命名規約に従って記載した。即ち、例えば表15の見出し "M330/55phr/0"は55phr N330カーボンプラック、油無しを意味している。表の副見出しには使用した天然ゴムが示されている。具体的には、対照サンプル1~450は、標準的等級の天然ゴムRSS1、SMRCVならびにSMR10より製造されていることが分かる。これらの天然ゴムの技術記載は広く入手可能であり、例えばLippincott and Peto,Inc

(AKron, Ohio, USA)より出版されているRubber World MagazineのBlue Bookより入手できる。前素練り込みする前の天然ゴムの分子量MMsol(MI)および様々な程度の前素練り込みを行った後の分子量(M2-M4)も表15 23に示した

表 15

			<b>N</b> 330/9	5 <del>p</del> hr/ 0		
		RSS1			SMRCV	
コード	サンプル	<b>₩</b> ₩ <sub>2 = 1</sub>	D (%)	サンプル	Min of	D (%)
	番号	(K)		番号	( <b>K</b> )	
M :		1200			971	
M 2		932			725	
М 3		864		İ	596	
M 4		485			482	
M : D 1	1	465	4, 24	17	426	4, 25
M:D2	2	571	3, 70	18	467	3, 39
M:D3	3	706	4, 79	19	486	4, 86
M 1 D 4	4	770	4, 52	20	535	4, 78
M 2 D 1	ŗ.	445	8, 60	21	380	2, 44
M 2 D 2	€	490	2, 69	22	393	9.71
M2D3	7	512	3, 68	23	433	4, 30
M 2 D 4	8	581	3, 93	i 24	498	5, 81
M 3 D 1	Ð	373	1, 83	25	342	3, 79
M 3 D 2	10	402	2, 50	26	358	4, 35
мз D 3	11	407	2, 98	27	371	ā, 55
M 3 D 4	12	452	8, 85	28	408	ā. 01
M4D1	13	511	3, 63	29	31 <b>1</b>	3, 66
M 4 D 2	1.4	337	3, 40	30	325	5, 31
M 4 D 3	15	\$62	ə. 08	81	344	ə. 91
M4D4	16	332	5. 23	32	369	5, 67

表16

		B⊥a	ick Pearl (	800/55phr/	מ	
		RSS1			SMRCV	
<b>⊐</b> ド	サンブル	NA col	D (%)	サンプル	M# , a ;	D (%)
	番号	(K)		番号	(K)	
MI		1041			869	
M 2		786			662	
мз		663			491	
ми		527			420	
MIDI	113	507	12, 20	- 29	418	ā. 15
M1D2	1 <b>1</b> 4	551	15, 10	180	482	4. 94
MID3	115	<b>7</b> 00	10, 20	131	515	6, 93
M · D4	116	786	ā. 72	132	583	8, 74
M2D1	117	420	ā. 6ā	183	403	2, 60
M 2 D 2	118	441	6, 50	134	438	2, 74
мара	119	649	7, 70	185	434	2, 83
M2D4	120	€06	5, 88	13€	530	3, 88
M3D1	121	387	3, 26	137	366	2. 38
M3D2	122	409	2, 98	138	378	2, 83
M3D3	123	456	3, 61	1 139	399	3, 04
M3D4	124	483	4, 61	140	431	2. 39
M4DI	125	339	2. 13	141	31 <b>1</b>	2. 22
M4D2	: : 126 !	367	2, 23	142	332	2, 27
M4D3	127	360	2, 60	143	344	2, 27
M4D4	128	403	1. 96	144	390	2, 73

表17

	N 351	/33phr/2	Ophr
		RSS1	
n - 8	サンブル	MT.o.	D (%)
	番号	(K)	
M 1		1300	
M 2		803	
M 3		501	
M 1 D 1	401	854	2.08
M 1 D 2	402	969	3.41
M 1 D 3	403	1040	3.68
M 1 D 4	404	1130	4. 91
M 2 D 1	405	648	1, 15
M 2 D 2	406	B68	2.16
M 2 D 3	407	675	2, 98
M 2 D 4	408	721	4, 70
M 3 D 1	409	532	1, 10
M 3 D 3	410	537	2.17
M 3 D 3	411	535	2, 45
M 3 D 4	412	558	4.06

表 18 A

		Regal 250/55phr/0										
-		RSS1			SMRCY							
⊐ – ₭ <sup>‡</sup>	サンプル 番号	NV.	(%) D	サンプル 番号	₩, (K)	D (%)						
M 1		1332			1023							
<b>M</b> 2		896			748							
M 3	ı İ	6C3			581							
M 4		408			504							
M 1 D 1	33	585	6, 95	49	609	1,93						
M 1 D 2	34	669	8.03	ត <b>្</b>	684	3, 29						
M 1 D 3	35	759	10.5	51	681	2, 21						
M 1 D 4	36	89€	14.1	52	702	4.09						
M 2 D 1	37	580	2, 71	53	539	2, 14						
M 2 D 2	38	6C2	2, 61	54	569	2. 72						
M 2 D 3	39	631	3, 61	อ์อ์	587	4, 75						
M 2 D 4	40	667	5, 43	56	595	6. 25						
M 3 D 1	41	467	1, 53	57	466	2. 88						
M 3 D 2	42	476	2.09	58	449	3. 19						
M 3 D 3	43	493	2, 32	១ <b>ទ</b>	464	4. ā3						
M 3 D 4	44	495	3, 54	60	50C	ő, <b>8</b> 9						
M 4 D 1	45	372	1, 53	61	423	2. 89						
M 4 D 2	4€	382	2, 09	62	433	3, 42						
M 4 D 3	47	381	2, 32	63	437	4, 39						
M 4 D 4	48	403	<b>3</b> . 54	64	447	4. 73						

表 16 B

	Re.	ga1 250.	/65/0	Reg	gal 250,	/75/0	Ret	ga1 250/	/65/10	
		<b>K</b> SS1			RSS1			KSS1		
コード	17加 番号	W <sub>rel</sub> (K)	D (%)	・サンブル   番号 	<b>W</b> , (K)	(%) D	がかる	₩, ;; (K)	D (%)	
M 1		1138			1138			1138		
M 2		901			901			901		
М3		660			660			630		
M 4		483			483			483		
M1D1	65	570	1, 50	81	539	2, 87	97	681	1, 89	
M 1 D 2	66	622	3, 25	82	624	4,50	98	702	2.69	
M1D3	67	707	7. 50	83	685	1.17	99	741	3,19	
M 1 D 4	68	788	4, 77	84	763	14, 35	100	822	5, 24	
M 2 D 1	69	534	1, 62	85	484	4. 32	101	593	0.91	
M 2 D 2	70	548	4. 19	86	512	2,96	102	<i>5</i> 72	3, 48	
M2D3	71	585	4, 31	87	557	1.71	103	642	4.23	
M 2 D 4	72	621	6, 21	88	605	1, 85	104	664	5, 35	
M3D1	73	459	3, 64	89	429	2, 27	105	507	2, 65	
M3D2	74	469	5, 79	90	446	2, 68	106	544	2.96	
M 3 D 3	75	511	5. 30	91	466	3, 46	107	535	8, 69	
M3D4	76	541	9. 13	92	491	3, 22	108	624	3, 27	
МИДТ	77	380	2, 34	93	368	2.11	109	416	1, 65	
M 4 D 2	78	392	2, 86	94	372	3, 13	110	<b>41</b> 3	3, 18	
M 4 D 3	79	399	4, 59	95	375	2, 92	111	418	6, 96	
M4D4	80	3 <b>9</b> 5	4.57	96	388	2, 92	112	441	6, 48	

表 19

			N 326/5	5 <b>p</b> hr/0		
		RSS1			SMRCY	,
□ — K	ザンブル 番号	MW************************************	D (%)	#ンプル 番号	(K)	D (%)
M 1		1200			1060	
M 2	i	1030			984	
М 3		724			777	
M 4		635			644	
M 1 D 1	145	55C	3, 49	161	644	1. 15
M 1 D 2	146	<b>63</b> 6	3, 54	162	661	1. 32
M 1 D 3	147	650	5, 39	163	697	1. 35
M 1 D 4	148	724	4, 79	164	732	2, 01
M 2 D 1	149	517	3, 16	165	59C	1. 50
M 2 D 2	150	572	2, 41	166	621	1.56
M 2 D 3	15 <b>1</b>	613	3, 11	167	641	2. 22
M 2 D 4	152	696	4, 37	168	676	2. 31
M 3 D 1	153	489	2, 78	169	551	1, 22
M 3 D 2	154	521	1.93	170	550	1, 62
M 3 D 3	155	504	3, 14	171	553	2.06
M 3 D 4	156	538	2.31	172	578	2, 68
M 4 D 1	157	415	1.74	173	497	1, 96
M 4 D 2	158	447	2, 17	174	495	2, 22
M 4 D 3	159	466	3, 13	175	505	2, 99
M 4 D 4	160	469	2.93	176	526	3. 37

表20

	i		N 110/5	ä <b>p</b> hr∕0		
		RSS1			SMRCY	
⊐ <b>–</b>  ¥	. がか 番号	₩₩ (K)	D (%)	f>7A 番号	( K )	D (%)
M 1		937			730	
M 2		764			653	
М 3		569			541	
M 4		449			463	
MIDI	369	<b>36</b> 0	1.24	385	334	1. 28
м 1 D 2	<b>3</b> 70	426	2, 50	386	339	1. 60
M 1 D 3	371	490	2, 69	387	372	1, 42
M: D4	<b>3</b> 72	618	4,68	388	413	2.80
M 2 D 1	373	340	0, 69	389	309	0.72
мяря	374	<b>3</b> 56	0, 85	390	314	1. 17
M 2 D 3	375	395	0.90	391	342	1. 27
M 2 D 4	376	433	1. 17	392	380	2. 94
M 3 D 1	377	<b>2</b> 95	9, 81	393	271	6, 94
мара	378	313	1, 27	394	292	0.93
мзрз	<b>3</b> 79	333	1, 20	395	314	1, 43
M 3 D 4	380	353	1, 35	396	351	1.77
M 4 D 1	<b>3</b> 31	255	1. 12	397	260	6.74
M 4 D 2	332	269	1.14	398	267	0, 93
M 4 D 3	383	287	1,30	399	284	1. 49
M 4 D 4	 : 384 :	316	1,67	400	297	1. 83
	:					

表21 (A)

表21(日)

	S 6	740/55p	hr/O		S 6	740/55p	hr/O
$n = k^{-1}$		RSS1		] ; n – K		SMRCV	
	サンブル 番号	(K)	(%)	]	サンブル 番号	₩, (K)	(%)
N1 İ		1080		M 1		873	
N2		837		M2		754	
из		724		ИЗ		574	
<b>у</b> 4		532		N 4		444	
<b>W1</b> D1	412	515	1. 24	¥1D1	428	433	0, 25
N1D2	413	556	1. 32	1 102	429	441	0.36
M1D3	414	633	1. 11	И103	430	467	0,34
M1T)4	415	732	1, 43	; W1D4	431	540	0.84
<b>M</b> 2D1 '	416	433	3, 86	M2D1	432	399	0.35
<b>M</b> 2D2	417	451	0, 90	H2D2	433	399	0, 41
<b>№</b> 2D3	418	495	1, 53	M2D3	434	422	0.62
<b>M</b> 2D4	419	542	2, 15	H2D4	435	469	0.44
M3D1	420	405	3, 25	H3D1	436	340	0.44
M3D2	421	418	9, 99		437	363	C. 81
<b>Ж</b> 3D3	422	447	9, 75	. язрз	438	377	0.89
M3D4	423	469	9, 73	<b>из</b> р4	430	403	0,86
<b>M</b> 4D1	424	371	9, 21	W 4D 1	440	363	0, 65
M4D2	425	387	9, 43	¥(4))2	441	328	1.05
M4D3	426	382	9, 30	144D3	442	342	1. 52
<b>%</b> 4D4	427	396	9, 56	<b>N</b> 4D4	443	3€0	1. 99

(81)

表22(A)

	Regal 660/55ph=/0									
		RSS1			SMRCV		SMR10			
⊐ <b>-</b> ⊧	#27/h 番号	₩ <b>,</b> , (K)	D (%)	#27ル 番号	₩ <b>7</b>	D (%)	がが 番号	<b>ЖГ</b> арт (К)	D (%)	
M 1		1110			836			740		
M 2	I	844			709			632		
М 3		609			584			492		
M 4		522		   	513			416		
M1D1	177	674	8, 35	193	564	1, 87	209	501	9, 54	
M 1 D 2	178	792	<b>7.</b> 89	194	611	2, 50	210	572	6, 68	
M1D3	179	891	8, 53	195	708	3.08	211	631	7. 37	
M1D4	180	676	<b>7</b> . 46	196	671	2, 31	.212	594	7, 18	
M 2 D 1	181	598	8, 56	197	520	5, 23	<b>2</b> 13	453	2.82	
M2D2	182	602	3, 89	198	558	4, 85	214	483	4.57	
M 2 D 3	183	697	<b>6</b> . 40	199	603	2, <b>88</b>	215	oöb	3, 92	
M2D4	184	659	5, 71	200	541	4, 25	216	550	5, 68	
M3D1	185	473	2. 03	201	486	2. 79	217	395	2, 13	
M3D2	186	506	1, 66	202	482	3, 76	218	393	1, 98	
M3D3	187	562	1, 94	203	504	3, 54	219	443	2, 49	
M3D4	188	559	4, 33	204	526	2, 41	220	449	1, 90	
M 4 D 1	189	401	2. 18	205	415	3. 16	221	335	1. 49	
M 4 D ?	190	426	1, 72	206	418	2, 92	222	345	1. 71	
M4D3	191	466	1, 48	207	446	2,80	223	363	1. 78	
M 4 D 1	192	449	3, 57	208	465	3. 13	224	374	2, 35	

表22(B)

	   Re,	 gal 660,	/45/0	Re	gal 660,	/65/0	Re	ga1 660	/65/10
		<b>R</b> SS1			RSS1			ESSI	
٦٠٠٢ 	<b>サ</b> ンプル 番号	(K)	99)	かか 番号	(K)	D (%)	もった。 番号	<b>NW</b> <sub>3-21</sub> (K)	D (%)
M 1		1245			1245			1245	
M 2		876			876			876	
E M 3		625			625			625	
M 4		482			482			<b>4</b> 82	
M 1 D 1	225	646	<b>3</b> , 45	241	563	14, 55	257	639	1, 63
M 1 D 2	226	697	3, 04	242	638	14. 09	258	699	3, 55
M 1 D 3	227	762	7, 70	243	691	13, 64	259	814	5, 44
M1D4	228	830	6, 75	244	790	11, 26	260	764	11, 25
M 2 D 1	229	574	4, 79	245	469	5. 88	261	572	2, 77
M 2 D 2	230	589	3, 92	246	507	7, 31	262	580	4, 39
M 2 D 3	231	636	6, 41	247	558	9. 72	263	610	5, 51
M2D4	232	675	6, 55	248	543	10, 59	264	<b>63</b> 8	7, 29
M3D1	233	471	2, 66	249	420	5, 48	265	474	4, 10
M 3 D 2	234	481	5, 17	250	426	6, 97	266	485	5. 72
марз	235	510	7, 78	251	468	8, 81	267	502	6. 24
M3D4	236	518	7, 89	252	471	9, 55	268	495	7, 13
M 4 D 1	237	388	<b>3.</b> 20	253	335	5, 19	269	390	5, 02
M 4 D 2	238	392	<b>5.</b> 65	254	344	6, 06	270	<b>3</b> 65	5. 88
M 4 D 3	239	397	5, 14	255	344	5, 59	271	410	7, 45
M 4 D 4	240	403	7. 54	256	361	8, 54	272	388	7, 59

表23 (A)

				—— 1	N234/35t	hr/6			1
		RSS1			SMRCV			SMR10	
□	サンプル 番号	(K)	D (%)	サ <i>7</i> ル 番号	(K)	D (%)	サップツ 番号	WW1	(%)
M 1		1080			845			743	
M 2		118			712			621	
М 3		595			577			445	
M 4		466			477			388	
M 1 D 1	273	350	1, 88	289	312	0.61	305	325	0, 78
M1D2	274	476	3, 40	290	317	0. 64	306	363	1. 66
M 1 D 3	2 <b>7</b> 5	459	<b>2.</b> 70	291	361	1, 03	307	400	1. 89
M 1 D 4	276	665	2, 70	392	419	1, 56	308	459	1, 73
M 2 D 1	277	32 <b>3</b>	0.40	293	304	0, 76	309	294	0.54
M 2 D 2	278	371	0, 78	294	306	0.72	310	321	1. 24
M 2 D 3	279	398	0. 74	295	318	0.74	311	354	1. 28
M 2 D 4	280	464	1, 43	296	357	1, 30	312	363	<b>1. 3</b> 9
M 3 D 1	281	278	0. 47	297	260	0, 53	313	260	0. 69
M 3 D 2	282	304	<b>0.8</b> 3	298	272	0, 65	314	263	0.48
MBD3	283	323	0, 82	299	395	0.58	315	289	1. 38
M3D4	284	36C	1. 08	300	302	1. 14	316	303	9, <b>78</b>
M 4 D 1	285	251	0, 61	901	244	0, 53	317	236	1, 00
M 4 D 2	286	286	0, 51	302	253	0, 81	318	239	0. 77
M 4 D 3	287	273	0.64	303	266	0, 62	319	257	0. 72
M 4 D 4	288	282	0, 53	304	296	B8 .0	320	268	1, 30

表23(B)

	l İ	N234/43	 5/0	·····-	N234/65	5/0		N234/65	5/0 ·	
	RSS1				RSS1			RSS1		
コード	かか 番号	(K)	D (%)	17/% 番号	(K)		形が 番号	(K)	D (%)	
MΙ	!	1185			1185			1185		
M 2		828			828			828		
М 3		623			623			623		
M 4		462		-	462			462		
M 1 D 1	321	507	7, 33	337	336	3, 44	353	395	5, 51	
M 1 D 2	322	598	8, 15	338	458	5, 09	354	478	7. 68	
MID3	323	731	8, 97	339	479	8, 17	355	555	9, 46	
M 1 D 4	324	772	12. 02	340	706	9, 90	356	637	8, 39	
M 2 D 1	325	486	3, 48	341	255	3. <b>22</b>	<b>3</b> 57	295	0, 58	
M2D2	326	479	5, 44	342	288	3, 34	358	352	1, 23	
M2D3	327	527	<b>5</b> , 51	343	<b>29</b> 5	4 65	359	394	1.35	
, <b>M 2</b> D 4	328	566	7, 70	344	393	5, 45	360	449	2, 37	
M 3 D 1	329	419	0.88	345	$23^{rr}$	1, 50	361	292	0, 86	
M 3 D 2	330	423	1. 24	346	252	1, 78	362	280	1.14	
M3D3	331	4 <b>31</b>	2, 55	347	270	2, 88	<b>36</b> 3	318	<b>2</b> , 19	
M 3 D 4	332	458	4.03	348	304	3, 92	364	340	2, 51	
M4D1	333	341	0.62	349	226	1, 18	365	235	0, 83	
M4D2	334	338	1, 13	350	214	1, 81	366	273	0, 99	
M 4 D 3	335	319	1, 37	351	233	2, 97	367	291	1, 39	
M 4 D 4	:   33€ 	354	2. 96	352	258	3, 83	368	307	2. 41	

# 好割しい実施態様の実施例

本発明のエラストマー複合体の追加の試料を製造した。具体的に述べると、本 発明の一連の天然ゴムエラストマー複合体1~32号を、前尾実施例Aと概念同じ 装置と手順を用いて製造した。これらエラストマー複合体は、下記表24に示す特性を有するマレーシア産の天然ゴムフィールドラチックスを含有させた。これら各エラストマー複合体には、さらに、図8に示す領域1、日または日1の形態学的特性(ストラクチャーと表面積)を有するカーボンブラックを含有させた。具体的に述べると、以下のカーボンブラック:Rega1(登録商標)660, N 234, N 326, N 110, Regal(登録商標)250, N 330, B lack Pearl(登録商標)800, Sterling(登録商標)6740およびN 351を月いた。カーボンブラックの添加量は30~75向hrの範囲内であり、そしてエキステンダー油の添加量は0~20phrであった。エラストマー複合体試料1~32号の製造の詳細は以下の表25に示す。

上記のように、エラストマー複合体 1 ~32号を製造するのに用いた装置および 手順は、実施例 A の装置および手順と概ね同じであり、かつこれら複合体は表2 に示すマスターバッチ配合物の添加剤を含有している。エラストマー複合体 1 ~ 32号を製造するために使用される装置と手順を、以下にさらに詳細に述べる。

#### 1. 装置

本発明の試料 エー32号は、図1, 4 および 7 を参照して先に説明した本発明の 装置と実質的に同じマスターバッチ製造装置を用いて製造した。スラリーノズル の末口(図7の項目167参照)の直径およびそのランド(図7の項目168参照)の 長さは、試料 1 ~32号の各々について表25に示してある。この装置の凝固ゴムゾ ーンは、混合ゾーンから吐出末端へ向かって徐々に直径が大きくなる四つの区

分を備えている。これられ区分の各々の直径と軸方向の長さ(第一の区分は一部 が混合ヘッド内にあり、一部はこれに対して密閉されたエキステンダー内にある )は表25に示してある。これら区分間に、軸方向に、短い整形された(faired) 和互結合部があった。

## 2. カーボンブラックスラリーの製造

- 撹拌機を備えたカーボンブラックスラリータンク内で、多量のカーボンブラックを脱イオン水と混合した。その撹拌機はカーボンブラックのベレットを粉砕して料製のカーボンブラックスラリーを生成した。各試料に対するカーボンブラックスラリーのカーボンブラックの濃度(重量%)は表25に示してある。操作中、

このスラリーは、初期分散を行うため、空気ダイヤフラムボンプによって連続的にグラインダーへボンプ輸送される。次に、このスラリーは、空気ダイヤフラムボンプを経由してコロイドミルに送られ、次にプログレッシングキャピティボンプ(progressing cavity pump)を通じてホモジナイザーへ、具体的に述べればMicrofluidizer Model M210(Microfluidics International Corporationから人手可能)へ送られる。上記マイクロフリューダイザーは微細に粉砕されたスラリーを製造した。このマイクロフリューダイザーから混合ゾーンへ送られるスラリーの流量は、マイクロフリューダイザーの圧力によって設定したが、マイクロフリーダイザーの圧力によって設定したが、マイクロフリーダイザーの圧力によって設定したが、マイクロフリカーが発展にある。スラリーの流量は、Micromotion(登録商標)質量流量計で監視した。カーボンブラックのスラリーがぶモジナイザーに送られる圧力およびホモジナイザーの出力圧力(圧力の数値はすべてpsigを表す)を各試料について表25に記載してある。カーボンプラックのスラリーは、ホモジナイザーからアキュムレーターへ送られ、混合ゾーンのスラリーノズルの末口でのスラリー圧の変動を減少させる。スラ

リーを混合ゾーンに送ったときのスラリーノズル末口の圧力と流量を各試料について表**25**に示してある。

#### 3.ラテックスの送出

ラテックスを55ガロンの供給ドラムに充填した。このラチックスには老化防止 剤のエマルジョンを添化してから上記充填を行った。亜リン酸トリスノニルフェ ニル(TNPP)および5antof lex(登録商標)134(アルキルアリール p フェニレ ンジアミン混合物)からなる老化防止剤を、表25に示す量で添加した。これら老 化防止剤は、各々、4量部のオンイン酸カリウム/100量部の老化防止剤を、エ マルジョンのpHを約10に調節するための水酸化カリウムとともに使用し、40重量 %のエマルジョンとして調節した。ニキステンダー油は、使用する場合、表25に 示す量で添加した。ラテックスを、供給ドラムから凝固ゴム反応器の混合ゾーン へ移動させるのに蠕動ポンプを使用した。ラテックスの流量と速度は表25に示し てある。ラテックス流は、Endress+Hauser質量流量計で自動的に測定した。カー ボンブラックの所望の添加量は、ラチックスの送り量:カーボンブラックスラリーの送り量の比率を適正な比率に維持することによって得た。

# 4. カーボンブラックとラチックスの混合

カーボンブラックスラリーとラテックスは、ラテックスをカーボンブラックス ラリー中に混入させることによって混合した。混入時、カーボンブラックは、ラ チックス中に十分に混合させて混合物を凝固させた。柔らかで温潤したスポンジ 状 "ウオーム(worms)" の類图ゴムが凝固ゴム反応器から放出された。

#### 5. 服沙k

- 縦岡ゴム反応器から放出された湿潤クラムゴムの含水量は表25に示してある。 湿潤クラムゴムは、脱水押出し機(The French Oil M

ill Machinery Company;直径3.5インチ)で脱水した。この押出し機で、湿潤クラムゴムを圧縮し、水を、クラムゴムから、押用機の長穴付きバンルを通じて絞り出した。最終のクラムゴムの水分を、本発財の各試料について表25に示してある。

#### 5. 乾燥と冷却

脱水されたクラムゴムを第二の押出し機中に落下させ、その押出し機で再び圧縮して加熱した。そのクラムゴムが第二押出し機のダイブレートを通じて押出されるときに水が気化した。製品の出口での温度と含水量は表25に示してある。乾燥した熱クラムゴムを、強制空気バイブレーティングコンベヤによって、約100~下まで迅速に冷却した(約20秒間)。

合計 ラテック 起源 添加剂 乾燥 灰分 窒素 揮発性 スの ゴム 固形分 脂肪酸 (%) タイプ (%) (%) ppn TITI Latex O. 35% NHo SDN. BIID. ZnO, TMTD 60 62.00.150.290.023%0, 1% ITNS 5.15% HYS<sup>1</sup> RRIMA. ドンテッ 9. 3% MI<sub>4</sub>. 0.380.3660.052 -28, 4 34.2クス ZnO, TNTO\*

表24 天然ゴムラテックスの特性

- a. RRIMMthe Rubber Research Institude of Malaysisを意味する。
- b. ZnO/TMTD: 生物材料保存のために使用される。 1 : 1 混合物を一般に0.025 %使用。
- c. HMS:中性硫酸とドロキシルアミン、ハーニー粘度の安定剤。

	) =- 94 f	山 (jst)	8. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C.
	マイクロス!	Artiff (psi)	66-66-66-66-66-66-66-66-66-66-66-66-66-
!	ノスルの末日	8 2 2 3 7 4 5 4 5 7 4 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8 8	ರ ಕಾರ್ಯಾಕ್ ರಾಜ್ ನಿರ್ವಾಗಿಕ್ಕಾರ ನಿರ್ವಹಿಸಿದ್ದಾರೆ. ರ ಕರ್ಮದಲ್ಲಿ ನಿರ್ವಹಿಸಿದ್ದಾರೆ. ನಿರ್ವಹಿಸಿದ್ದಾರೆ ನಿರ್ವಹಿಸಿದ್ದಾರೆ.
	スーリモス	值 将 (J.D)	00000000000000000000000000000000000000
木が明の試料製造の詳細	Sabotエラストマ・複合体	エキステンタ:: (i) ※加量(ibr)	. സമ്പരമെയ്യുള്ളമാലമായ്യ്യായായിലെ ത്രാധാന്ത്ര ത്രമ്മായവായിലെ ത്രത്തിലെ ത്രത്തിലെ ത്രത്തിലെ ത്രത്തിലെ ത്രത്തിലെ
表25 木%明		ブラック 読む <b>達</b> (ahr)	អ្នកក្រសួសក្នុកស្នកក្នុង មិស្តិស្តិស្តិស្តិស្តិស្តិស្តិស្តិស្តិស្ត
		7-57 27.7	N330 N330 N330 N330 REGAL 250 REGAL 250 REGAL 250 REGAL 302 REGAL 600 REGAL 600 REGAL 600 N234 N234 N234 N234 N234 N234 N234 N234
		35 47 X 09 17	- ファフンファファファファファファファファファラララララー: - イイイイ・オー・イー・イー・オー・オー・オー・デーチャー・デー   1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1
	( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( )	() () () () () () () () () () () () () (	ု လက် အားကို တား - အောက်တို့ သည် သူလည်း အားကို သောကို သည် သည်း သည် သည် သည် သည် သည် သည် သည် သည် သည် သည်

	四スラリーの 四巻度(%WL)			ದ್ವತ್ತುಗಳಿಗೆದ್ದತ್ತಗಳಿಗತ್ತಡ್ಡುವುತ್ತತ್ವ ತ್ರಗತ್ತಡ್ಡದ್ದವ್ವವಿಗಳು ಚಾರಾಧ್ಯ ೧೯೯೮ ಕನ್ನಡಚಿತ್ರವಾಗಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾರ್ಥ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರಶಾಣ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರವ ಪ್ರತಿ ಪಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ್ರತಿ ಪ
		第4文字	直径(in)   長さ(in)	
(結2)		#3区本	옵(ic) [통하(in)	<ul><li>※※※※※※※※※※※</li><li>※※※※※※</li><li>※※※※</li><li>※※</li><li>※※</li><li>※※</li><li>※※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li><li>※</li></ul>
表25		第2区岩	파 [PP) 원절 [	
			(正)处理	
		第1区分	(三) 寿等	ಧ−−+ಧಇಧಿಇಧ−+-೨೬೦+೬೬೮೦೦+೨೮೮೦+೨೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮೮
			(m))청보	######################################
	A発明の 戦争番号			HOWENCH TO THE THE THE THE THE THE THE THE THE THE

最い (経路)

	1	ı		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
(P) (P) (P) (P) (P) (P) (P) (P) (P) (P)	į	サテックス建建	(ft/scc)	ಹಬ್ಬಲ್ಲಹದಲ್ಲಿ ಅಂದು ಕಾರ್ಯಕ್ಷಿಕೆ ಕೊಳ್ಳು ಕ್ಷಾಗ್ತಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ್ಕಿಕ
		ラテックス強制	(Ibs/min)	ಕನ್ನಡಬಾದವರದ (F.4.4.4.0.0) (C.4.4.4.0) ಗಳುಗಳು (A.4.4.0.0) . ೯೨೦೯ ಕನ್ನಡಿಗಳು (C.4.4.4.0.0) (C.4.4.4.0) ಗಳು (C.4.4.4.0)
	6.4 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	老化的 上卻	Sectofics (phr)	ಕಾಶಕ್ಷನ್ ನಡೆದು ನಡ
			INM*(phr)	ಣರಣಣಣಣಣಣಣಣಣಣಣಣಗಳು ಇವರ ನಿರ್ವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧಿ ಪ್ರವಧ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್ರವಧವೆ ಪ್
		スラリー速度	(ft/sec)	8422455688888883448888888844444446566 84424566988888834488888888884444446566
		側掲上の中ド	(Tb/min)	ಹಂಡುದುದುದುದುದು ಈ ಹುದ್ದಿ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷ್ಣಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗ್ರಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಿಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಿಗಳ ಕ್ಷಿಗಳ ಕ್ಷಾಗಿಗಳ ಕ್ಷಿಗಳ
	± 11 €	スラリ ノズル 末口の王力 (psi)		44 4 6 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		l F	ాబలు ఉండా ఇందర్వానని ఇదాని బావించిన ప్రభుత్వ స్తున్న మాత్రముత్తున్న స్తున్న స్తున్న స్తున్న స్తున్న స్తున్న స్ :

	[	 (%)	· ·— ··— ·· ··
表25 (疑き)	14分・強強	<b>ARR</b> ARR ARR	වෙනුවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැවැ
		年数数值级 (1 下)	444 11-1 20-588 - 第23 - 第24 - 第277758888888888888888888888888888888888
		最終クラムゴム名水圏(%)	ක 6- (-ටිස්සුසු ඩු ක් පීටිවිසුවලාවුණ
		到期クラムゴム会水量(%)	ರ್ಷ-೧-೯೧೮ ಕರ್ಷ-೧೯೯೯
	を指導す	記料香品	HOGA with Ac 클릭하려운 TAR FREE SHOW NOW NOW NOW NOW NOW NOW NOW NOW NOW N

試料2と3は、不利な工程条件下でのマクロ分散を測定するため、マイクロフリューダイザーの出口などの出口圧力がほぼゼロの状態で製造したことに留意すべきである。

得られたマスターバッチのカーボンブラックの優れた分散度を、マスターバッチのマクロ分散特性およびブル部分の分子量(MWsor)によって示す。以下の表26は、本発明の試料1~32号のMMsorとマクロ分散値ならびに各試料に用いたカーボンブラックとエクステンダー油(使用した場合)を示す。カーボンブラックの添加量とエクステンダー油の添加量は、表26ではphrの値である。

表26 本発明の試料のソル分子量と未分散面積

本発明の	CB/添加量/	N¥,.,	D (%)
試料番号。	エキステンダー曲	(K)	
123456789012345678901222222222222222222222222222222222222	N83C/85/0 N83C/86/0 N83C/85/0 R25C/85/0 R25C/65/0 R25C/75/0 R25C/75/0 R25C/65/0 R25C/65/0 R66C/65/0 R66C/65/0 R66C/65/0 R66C/65/0 R234/55/0 N234/55/0 N234/65/0 N234/68/5 N234/68/5 N234/68/5 N234/68/5 N234/68/5 N234/68/5	305 726 544 870 6519 667 867 567 867 867 867 8618 878 878 8482	0. 26 0. 54 0. 40 0. 08 0. 16 0. 03 0. 02 0. 12 0. 02 0. 15 0. 10 0. 15 0. 10 0. 17 0. 20 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 18 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 17 0. 10 0. 12 0. 12 0. 13 0. 14 0. 15 0. 16 0. 17
29 30 31 32	N234/49/5	618	0.12

カーボンブラック添加量が55phrの本発明の全試料、の試験結果を、乾燥混合法で製造した対応する一連の上記天然ゴム対照試料に対して、マクロ分散値とMM sol 値を図9の片対数グラフに示す。各々55phrの添加量のカーボンブラックを含有する本発明の試料の少なくとも一つのデータ点を、カーボンブラックの添加量が55phrの全対照試料とともに図9に示ぎ(33phrのN351カーボンブラックと20量部のエキステンダー油を使用した対照試料401~4124図9

に示してある。)本発明の試料のマクロ分散が優れていることは、表26と図9から分かる。具体的に述べると、本発明の諸試料は、MMs。」債が0.85×10°より大き

い場合でも、D(%)値が一般に0.2%より低いが、一方、対照試料は、どんなM Weer 値の場合でも、このような優れたマクロ分散を全く達成していない。したがって、図りに示すデータは、新規のエラストマー複合体のマクロ分散特性が、広範囲のMWeer 値にわたって、従来知られている乾燥混合法で同等の成分を用いて達成できるマクロ分散特性より著しく優れていることを明確に示している。図りに示す各種データ点に用いた符号および続いて考察する図10~25は以下の一覧表で説明する。

# 図面の説明

図9 NRマスターバッチの分散特性とMMs at

*	対照試料	$177 \sim 224$	:
<b>A</b>	対照試料	$273\sim320$	
+	対照試料	$145\!\sim\!176$	
Α	対照試料	369~400	
0	対異試料	$33 \sim 64$	
×	林馬照太	$1 \sim 32$	
•	対照試料	113 ~ 144	: 
$\Diamond$	対照試料	412 - 443	ĺ
•	対照試料	401 ~ 412	
	本発明の諸語	试料	

図10 NRマスターバッチの分散特性とMWs。)
(領域工)

- 黨 対照試料 177~224
- ➡ 本発明の試料10。
- Ⅰ 対照試料 145~176
- ░░ 本発明の試料 9
- 対類試料 33~64
- 三日 本発明の試料4
- × 対照試料 1~32
- ■■ 本発明の試料1
- 対版試料 113~144
- 本発明の試料 8

図11 NRマスターバッチの分散特性とMMsor

## (領域日)

- ▲ 対照試料 273 - 320
- 木発明の試料14
- △ 対照試料 369~400
- 木発明の試料21

# 図12 MRマスターバッチの分散特性とMMs or

## (領域111)。

- 対照試料 401~412 !
- 本発明の試料22
- ◇ 対限試料 412~443
- □ 本発明の試料23

# 図13 NRマスターバッチの分散特性とMMs or

(N330カーボンブラック、55phr)

● 対照試料 : ~32

■ 本発明の試料1~3

図14 NRマスターバッチの分散特性とMWsor

(REGAL 250カーボンブラック)

● 対照試料 33~64

■ 本発明の試料 4

① 対照試料 65~80

コー本発明の試料 5

◇ 対照試料 81~96

< 本発明の試料 6

◆ 対照試料 97~112

▲ 木発明の試料?

図15 MRマスターバッチの分散特性とMMs a.t.

(BLACK PEARL 800カーボンブラック、55phr)

● 対照試料 113~144

■ 本発明の試料 8

図16 MRマスターバッチの分散特性とMMs or

(N326カーボンブラック、55phr)

● 対照試料 145~176

■ 本発明の試料 9

図17 NRマスターバッチの分散特性とMMs or

(REGAL 660カーボンブラック)

- 対照試料 177~224
- 本発明の試料10
- 対照試料 225~240
- □ 本発明の試料11
- 対類試料 241~256
- △ 本発明の試料12
- ◆ 対照試料 257~272 ·
- ▲ 本発明の試料13

図18 NRマスターバッチの分散特性とMWsor

(N234カーボンブラック)

- 対照試料 273~320 1
- 本発明の試料14~17
- 対膜試料 337~552
- || 本発明の試料19
- ◇ 対照試料 321~336
- △ 本発明の試料18
- ◆ 対照試料 353~368
- ▲ 本発明の試料20

## 図19 NRマスターバッチの分散特性とMMs or

(N110カーボンブラック、55phr)

- 対照試料 369~400
- 本発明の試料21

## 図20 MRマスターバッチの分散特性とMWs or

(N351カーボンブラック、33phr)

- 対照試料 401~412
- 本発明の試料22

図21 MRマスターバッチの分散特性とMWs。L

(STERLING 6740カーボンブラック、55phr)

- 対照試料 412~448
- 本発明の試料23 j

||図22|| 角裂生長速度に対する岬。この効果

(55phrの添加量でN234カーボンブラックを含有するML

コンパウンド)

- 対照試料 273~288 木発明の試料16

|| 図23 || 角製生長速度に対する欄(a) の効果

(55phrの添加量でN328カーボンブラックを含有するMR コンパウンド)

- 対照試料 145~160
- ① 本発明の試料 9

(55phrの添加量でREGAL 660カーボンブラックを含有す るNRカンバウド)

図25 各種の添加量で N 234カーボンブラックを含有するNRコンパウンドの最大 $Tan\delta$  〔60℃におけるストレインスウィーブ( $Strain\ Sweep$ )〕

- ★発明の試料24~28() 本発明の試料29~32対照試料 444~450
- 図30 2相(カーボンブラック/シリカ) 凝集体を含有するMRマスターバッチのマクロ分散特性と前記MRマスターバッチの ゾル部分のMM
  - 財 対照試料 451~458■ 本発明の試料33○ 対照試料 459~466□ 本発明の試料34

図31 カーボンブラックとシリカの混合物を含有するMRマスター バッチのマクロ分散特性と前記MRマスターバッチのブル部 分のMM

- 対照試料 491~498
- 本発明の試料38
- 対照試料 183~490
- 三 本発明の試料37
- 対照試料 475~482
- コ 本発明の試料36
- 対照試料 467~474
- 本発明の試料35

図9に示す本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、下記式で表される

MMs at が0.45×100未満の場合、

$$D_{-}(\%) < 0.2\%$$
 (1)

そして、0.45×106<West < 1.1×106の場合、

$$\log (T) > (\log(0.2) - 2.0 \times [MW_{sol} - (0.45 \times 10^6)] \times 10^6$$
 (2)

上記式(1)のマクロ分散D(%)が、10ミクロンより大きい欠陥が測定された未分散面積の百分率であることは上記考察から分かるであるう。0.2%に等しいD(%)は、天然ゴム乾燥マスターバッチに対する、領域1,日および日口のすべてのカーボンブラックの限界マクロ分散特性であることは図9から分かる。すなわち、上記式(1)で記載されているように、MWsolを0.45×106末満まで低下させるのに十分混合した後でさえ、どんなMWsolの場合でも、乾燥素練りマスターバッチは、どれも0.2%のマクロ分散特性を達成しなかった。図9に示す乾燥マスターバッチの対照試料のMSsolが0.

45×106~1.1×106の場合、その分散特性は一層劣っているが、対照的に、MMs or がこの範囲内にある本発明の試料は優れた分散特性を保持している。MMs or が0.4 5×106~1.1×106である図9に示す好ましい実施態様は、どれも、好ましいマクロ分散の限界0.2%を超えない。そのことについては、図9 (および以下に考察する他の図)においてX 抽上にある (すなわち、1)%値が0.1%) ことが示され

ている好ましい実施態様のデータ点は、0.1またはこれより優れた(すなわちさらに低い)D(光)値のマクロ分散特性を有しているかもしれないと解すべきである。

#### 領域上のカーボンブラックの試料

図8に示す領域上の形態学的特性(すなわちストラクチャーと表面積)を有するカーボンブラックを含有してなる本発明の試料、およびこのような領域上のカーボンブラックで製造した前記の対応する対照試料を、図10に示す庁対数グラフで比較する。具体的に述べると、図10は、カーボンブラックのRegal(登録商標)250、N330およびBlack Pearl(登録商標)800を30phr~75phrの範四内の添加量でかつにキステンダー油を0phr~20phrの範囲内の添加量で含んでなる本発明の試料と対応する対照試料のマクロ分散値と加慮。正備を示す。本発明の全試料のカーボンブラックの分散が優れていることは図10に示されており、これらの試料は、この開示内容によって、エラストマー複合体の好ましい実施態様を示している。本発明の試料はすべて図10の正線101の下方にあり有利であるが、一方、対照試料はすべて分散が分っており直線101の下方にあら有利であるが、一方、対照試料はすべて分散が分っており直線101の下方にある。事実、図10に示す好ましい実施態様は、分散が最も困難な、領域上のカーボンブラックを含有していても、すべて、D(%)値が0.3%未満である。最も好ましい実施態様はすべて、Msor値が0.7×100を超えて有利を場合でも、D(%

)値は0.2%を超えない。図10に示すデータは、領域1のカーボンプラックを含有しかつMMs ar 値が広範囲にわたっていて、ここに開示されている新規なエラストマー複合体のマクロ分散特性が、従来の乾燥素練り混合法によって同等の成分を用いて得られるものより有意に優れていることを明確に示している。図10に示す水発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される。

MMs o r が0.7×106 未満の場合、

$$D_{\rm c}(\%) < 1.0\%$$
 (3)

そして、0.7×10<sup>6</sup><MNs o 1 < 1,1×10<sup>6</sup>の場合、

$$log(1) < log(1,0) - 2.5 \times (MW_{501} - (0.7 \times 10^{6})) \times 10^{-6}$$
 (4)

D(%)は、10ミクロンより大きい欠陥が測定された未分散面積の百分率であり、1%が、本発明による天然ゴムマスターバッチに対する、領域1のすべてのカーボンブラックの限界マクロ分散特性であることが分かるであろう。すなわち、乾燥素練りマスターバッチはどれも、上記式(3)で示されているように、MMs。1が0.7×106未満に低下するよう十分に乾燥混合した後でさえ、どんなMMs。1の場合でも、1.0%およびこれより優れたマクロ分散特性を達成しなかった。図10に示す乾燥マスターバッチ対照試料のMMs。1が0.7×106~1.1×106の場合、その分散特性なさらに労っている。対照的に、MMs。1が1.7×106の場合、その分散特性なさらに労っている。対照的に、MMs。1が1.7×106~1.1×10である好ましい実施強様は、マクロ分散が、好ましいマクロ分散の限界0.2%より十分に小さい。領域1のカーボンブラックを含有している本発明のエラストマー複合体が、これまで達成されたことがない、マクロ分散特性とMMs。1のバランスを保っていることが分かるであろう。

領域日のカーボンブラックの試料。

図8に示す領域日の形態学的特性(ストラクチャーと表面種)を有するカーボンブラックを含有する本発明の試料、およびかような領域日のカーボンブラックで製造された、上記の対応する対照試料を図11に示す片対数グラフで比較する。 具体的に述べると、図11は、カーボンブラックのN234とN110を40phr~70phrの範囲の添加量で含有する本発明の試料と対応する対照試料のマクロ分散値とMMs。」 位を示す。本発明の全試料のカーボンブラックの分散が優れていることは図11に示されており、これらの試料は、この開示内容によって、エラストマー複合体の好ましい実施態様を示している。本発明の試料は、図11において直線111の下方にあり有利であるが、対照試料はすべて分散が分り、直線111の下方にある。重度、図11に示す、領域日のカーボンブラックを含有する好ましい実施態様は、D(%)値が0.3%より小さい。最も好ましい実施態様は、どんなMMs。」 債の場合でも、D(%)値は0.2%を超えない。図11に示すデータは、領域日のカーボンブラックを含有しかつMMs。」 債が広範囲にわたっているここで開示された新規なエラストマー複合

体のマクロ分散特性が、従来の乾燥混合法で同等の成分を用いて達成可能であった分散特性より有意に優れていることを明確に示している。

図11に示す本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される。 MWs o i が0.35×104 未満の場合、

D 
$$(\%) < 0.3\%$$
 (5)

そして、0.35×106<MWs or < 1.1×106の場合、

$$\log D < \log (0.3) + 2.8 \times (MMs or (0.35 \times 10^6)) \times 10^{-6}$$
 (6) 0.30%の $D$  (%)が、本発明の天然ゴムマスターバッチに対する、領域日のすべてのカーボンブラックの限界マクロ分散特性であり、

そして0.35×106が限界間のは位であることが分かるであろう。すなわち、乾燥マスターバッチはどれも、上記式(5)で示されているように、間のはか0.35×106未満に低下するよう十分に乾燥混合を行った後でさえ、どんな間のにの場合でも、0.30%またはこれより優れたマクロ分散特性を達成しなかった。図11に示す乾燥マスターバッチの対照試料の間のはが0.35×106~1.1×106の場合、その分散特性は一層分っている。対照的に、上記範囲内の間のにを有する本発明の試料は優れた分散特性を保持している。間のはが0.35×106~1.1×106である図11に示すずましい実施態様は、マクロ分散が、好ましいマクロ分散の限界の0.2%より十分に低い。領域日のカーボンブラックを含有する本発明のエラストマー複合体が、これまで達成されたことがない、マクロ分散特性と間のエラストマー複合体が、これまで達成されたことがない、マクロ分散特性と間のコラストマー複合体が、これまで達成されたことがない、マクロ分散特性と間のコラストマー複合体が、

#### 領域日日のカーボンブラックの試料

図8に示す領域日日の形態学的特性(すなわちストラクチャーと表面積)を有するカーボンブラックを含有する水発明の試料、およびかような領域日日のカーボンブラックで製造された上記の対応する対照試料を、図12に示す片対数グラフで比較する。具体的に述べると、図12は、カーボンブラックのN351およびSterling 6740を30phr~70phrの範囲内の添加量でおよびエキステンダー油を0phr~20phrの範囲内の添加量で含有する本発明の試料と対応する対照試料のマクロ分散値とMMs。i 債を示す。本発明の全試料のカーボンブラックの分散が優れているこ

とは図12に示されており、これらの試料は、この開示内容によって、エラストマー複合体の好ましい実施態様を示している。本発明の試料はすべて、図12において直線121の下方にあり有利であるが、一方、対照試料はすべて、分散が劣っており、直線121の上方にある。事実、図12に示す、領域111のカー

ボンブラックを含有する好ましい実施態様は、MWsori 値が有利に0.3×10<sup>6</sup>を超えても、そして0.7×10<sup>6</sup>であってさえ、D(%)値が0.1%以下である。図12に示すデータは、領域日1のカーボンブラックを含有しかつMWsori 値が広範囲にわたっている、ここで開示された新規なエラストマー複合体のマクロ分散特性が、従来の乾燥混合法で同等の成分を用いて達成可能であった分散特性より有意に優れていることを明確に示している。図12に示す本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される。

MWs e i が0.35×106 未満の場合、

$$D_{-}(\%) < 0.1\% \tag{7}$$

そして、0.30×106<MMs or < 1.1×106の場合、

追加試料の比較

本発明の語試料のマクロ分散値を、先に考察した図8~12のように、それら試料のMMs or 値の関数として、図13~21の片対数グラフで示す。一層具体的に述べると、図13~21において、特定のカーボンブラックを含有する上記本発明の全試料(特に指示されている場合には特定のカーボンブラックの添加量の試料に限定されている)を、対応する対照試料とともに一つの片対数グラフに示してある(各図に入っている本発明の試料および対照試料の参照番号を示す前記一覧表参照)。こうして、図13は、カーボンブラック N330を55phr含有する上記本発明の試料の対照の試料の分散特性とMms or を示す。図13に示すデータは、カーボンブラックN330を含有しかつMMs or 値が広範囲にわたっている本発明の新規なエラストマー複合体のマクロ分散特性が、その対照試料より有意に優れていることを明確に示している。図13に示す、カーボンブラック N330を含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散は、下記式で表される。

MWs o i < 0.6×106の場合、

$$D(\%) < 1\%$$
 (9)

そして、0.6×106<MWs at < 1.1×106の場合。

$$\log (D) < \log(1) - 2.5 \times [MW_{sel} - (0.6 \times 10^6)] \times 10^{-6}$$
 (10)

上記乾燥素練りマスターバッチはどれも、MWsorが0.6×10%未満に低下するよう 十分に乾燥混合した後でさえ、どんなMWsorの場合でも、1.0%のマクロ分散特性 を達成しなかった(上記式9参照)。カーボンブラック N330を55phr含有する対 照試料であってMWsorが0.6×10%~1.1×10%に維持された試料は、D(%)値が 一層高く、例えば未分散面積が4%を超えていた。

図14は、カーボンブラックREGAL 250を含有する、上記の本発明

の試料と対照試料の分散特性とMMs。」を示す。図14に示す選択された本発明の試料と対照の試料は、上記のようにエキステンダー油を含有させた。図14に示すデータは、カーボンブラックREGAL 250を含有しかつMMs。」位が広範囲にわたっている本発明の新規なエラストマー複合体のマクロ分散特性が、その対照試料より有意に優れていることを明確に示している。図14に示す、カーボンブラックREGAL

250を含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される

MWs e i < 0.6×106の場合、

因していると考えられる。

$$D(\%) < 1\%$$
 (9)

そして、0.6×10<sup>®</sup> < MWs at < 1.1×10<sup>®</sup> の場合、

のMMs at およびカーボンブラックのマクロ分散が一層良好であることに大きく起

表27 カーボンブラックREGAL 250を55phrの添加量で含有する NRコンパウドのコンパウンド特性

		ムーニー粘度 ML(1)4) @ 100°C	硬度	E 100 (psi)	E300 (psi)	引張り強さ (psi)	EB (96)
	2014年2014年2014年2014年2014年2014年2014年2014年	60, 63 73, 88 81, 49 84, 04 57, 38 60, 10 56, 28 77, 40 44, 40 47, 96 49, 64 50, 10 36, 82 38, 23 35, 35 40, 58 71, 97	55, 35 57, 80 58, 86 59, 85 56, 75 57, 05 57, 25 56, 50 57, 05 56, 50 56, 50 56, 50 57, 00	181, 25 235, 14 243, 60 244, 23 218, 70 216, 75 225, 15 216, 00 214, 53 221, 26 210, 50 177, 47 198, 53 199, 03 204, 52 218, 18	999, 82 1293, 88 1265, 26 1215, 87 1259, 99 1206, 60 1246, 23 1330, 87 1214, 73 1202, 93 1223, 07 1140, 90 852, 86 1111, 04 1130, 00 1132, 94 1230, 30	4090, 24 8978, 24 4103, 41 3960, 32 4119, 85 4023, 65 4059, 91 4038, 68 3944, 05 4018, 24 4058, 33 3790, 56 3660, 56 3671, 49 3961, 06 4036, 30	675. 0 595. 0 613. 0 614. 0 502. 0 520. 0 621. 0 618. 0 611. 0 638. 0 638. 0 632. 0 632. 0 611. 0
-	試料番号	弹性反発 <b>亀裂</b> (cm/首,	生長速度 万サイクル	<b>摩</b> 頼版 レ) (8	<b>類</b>	່ເຫ <i>ີດ</i> ຮີ 0 °C	Tand @ 60°C
· i	对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对	64, 58 63, 75 63, 30 64, 65 63, 45 63, 90 64, 20 64, 20 64, 50 63, 90 64, 35 64, 35 63, 65	2, 00 1, 83 2, 39 1, 42 3, 00 2, 99 2, 17 1, 69 2, 84 3, 50 3, 50 3, 50 3, 94 3, 48 0, 92	0. 19 0. 19 0. 19 0. 10 0. 10 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19 0. 19	82 92 80 63 63 63 82 90 97 79 91 92 80	0. 167 0. 155 0. 155 0. 150 0. 162 0. 176 0. 184 0. 175 0. 189 0. 188 0. 185 0. 184 0. 184	0. 091 0. 083 0. 091 0. 091 0. 100 0. 099 0. 093 0. 102 0. 103 0. 104 0. 104 0. 104 0. 106 0. 110 0. 106

図15は、カーボンブラックBLACK PEARL 800を55phrの添加量で含有している前記の本発明の試料と対照の試料の分散特性とMMs。」そ示す。図15に示すデータは、カーボンブラックBlack Pearl 800

を含有する本発明の新期なエラストマー複合体のマクロ分散特性が、その対照試料より有意に優れていることを明確に示している。図15に示す、カーボンブラックBlack Pearl 800を含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下

記式で表される。

MWs e 1 < 0.65×104の場合、

$$D_{-}(\%) < 1.5\%$$
 (11)

そして、0.65×106<MWs or < 1.1×106の場合、

表28 カーボンブラックBlack Pearl 800を55phrの添加量で含 有するNRコンパウンドのコンパウンド特性

試料番号	ムーニー粘度 ML(1+4) @ 100℃	硬度	E100 (psi)	E300 (psi)	引張り強か (psi)	EB (%)
113 114 115 116 117 118 119 121 123 124 対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対対	110. 5 109. 0 106. 4 105. 7 110. 6 118. 9 111. 9 110. 6 115. 0 116. 5 113. 4 101. 4 105. 5 110. 7 131. 3	66. 4 67. 3 67. 2 69. 0 67. 1 67. 1 67. 8 66. 8 66. 8 66. 4 66. 8 66. 8 62. 5	345. 0 367. 0 363. 0 322, 0 316. 0 309. 0 373. 0 287. 0 286. 0 286. 0 286. 0 286. 0 292, 0 227. 0	1333. 0 1427. 0 1311. 0 1202. 0 1400. 0 1395. 0 1323. 0 1262. 0 1262. 0 1283. 0 1274. 0 1722. 0 1150. 0 1291. 0	3878. 0 4033. 0 3896. 0 3856. 0 4180. 0 3967. 0 4149. 0 4199. 0 4217. 0 4071. 0 4166. 0 3978. 0 4206. 0 4167. 0 4209. 0 3418. 0	598 606 610 626 616 607 634 653 667 624 823 631 656 670 643 532
战料番号		<u></u>   <u>牛</u> 見速度  万サイク。		減量 ? )	ໃລກ∂ ເ⊛ິ0 C	Tan හි @ 60°C
113 114 115 116 117 118 118 119 121 122 123 124 大坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟坟	46. 0 47. 0 46. 6 40. 9 41. 8 41. 7 42. 1 39. 2 38. 7 40. 2 41. 7 38. 9 38. 1 38. 2 39. 4	3, 14 2, 72 2, 54 4, 65 2, 80 4, 33 3, 38 4, 58 4, 79 3, 40 5, 57 4, 79 0, 27		148 125 163 194 086 112 091 095 075 103 103 102 076 070 073 113 130	0, 281 0, 274 0, 233 0, 244 0, 327 0, 385 0, 321 0, 301 0, 312 0, 344 0, 329 0, 352 0, 355 0, 346 0, 357 0, 297	0. 184 0. 185 0. 171 0. 163 0. 214 0. 225 0. 216 0. 266 0. 236 0. 232 0. 209 0. 248 0. 241 0. 254 0. 23 0. 199

図16は、カーボンブラック N326を55phrの添加量で含有する上記の本発明の試料の対照の試料の分散特性と $m_{501}$ を示す。図16に示すデータは、カーボンブラック N326を含有する本発明の新規な

エラストマー複合体のマクロ分散特性がその対照試料より有意に優れていること を明確に示している。図16に示す、カーボンブラック N326を含有する本発明の エラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される。 MWs e i < 0.7×106の場合、

$$D_{-}(\%) < 1\%$$
 (13)

そして、0.7×10<sup>6</sup><MMs at < 1.1×10<sup>6</sup>の場合、

$$log (D) < log(T) - 2.5 \times [MWs_{el} (0.7 \times 10^{6})] \times 10^{-6}$$
 (14)

上記対照試料はどれも、MGs at が0.7×10<sup>6</sup> 未満に低下するよう十分に乾燥混合した後でさえ、どんなMGs at の場合でも、1.0%またはこれより優れたマクロ分散特性を達成しなかった。対照的に、カーボンブラック N326を含有しかつMGs at が0.7×10<sup>6</sup> を超える本発明のエラストマー複合体は、0.2%を超えないD(%)のような優れたマクロ分散を保持している。図16元示す、カーボンブラック N326を含有する本発明の試料および対照の試料のコンパウンド特性と性能特性を、以下の表29に示す。本発明の試料9号は、0.77cm/百万サイクルに過ぎないその非常に低い亀裂生長速度によって示されているように、亀裂生長に対する特別に優れた抵抗性を有していることが分かる。事実、本発明の試料はその対応する対照試料よりなるかに優れている。このことは、ささに考察したように、本発明の試料の一層良好なMMs at とカーボンブラックのマクロ分散に入きく起因していると考えられる。

表29 カーボンブラック N 326を55phrの添加量で含有するNRコ ンパウンドのコンパウンド特性

- Notice - TO - TO					ACTOR - Day	
試料番号	ムーニー粘膜		E 100	E 300	ー 引張り強さ (pp.i)	EB (%)
<u> </u>	ML(114) @ 10		(psi)	(psi)	(psi)	(70)
対版 145	64, 6	60.5	289	1713	3931	548
対膜 146	88, 2	62.4	340	1802	4094	553
対照 147	<del>9</del> 1. 7	63, 3	391	1917	3991	528
対照 148	96. 8	64.3	326	1664	4045	572
対照 149	52, 4	61.5	310	1763	4029	552
対照 150	67. 7	62.6	326	1855	4055	551
対照 151	76. 5	60. <b>6</b>	287	1641	4015	5/5
対照 152	79. 4	<b>63. 6</b>	329	1720	3980	559
対照 153	<u>57. 2</u>	60.1	282	1623	3968	579
対照 154	57, 2	62. 8	354	1889	38 <b>79</b>	525
対照 155	υ <b>λ</b> , 3	62 <b>. 2</b>	323	1763	3975	556
対照 156	6 <b>0.</b> 1	61. <b>9</b>	310	1667	3918 27eu	564
対照 157	45. 1 50. 1	61.2	328	1748 1740	3 <b>768</b> 38 <b>1</b> 7	533 546
!対照 158 - 対照 160	50, 1	60. 6 61. <b>3</b>	315 306	1740 1675	33 <b>8</b> 0	563
)対照 169 対照 160	53. 2 50. 5	62. 6	300 331	1675 1752	3884	549
本発明9	77. 8	60. <b>9</b>	277	$\frac{1102}{1563}$	4167	593
14-145-11 A	1 0	00.0		70.00	7.4.01	
 試料番号				 [減量		Tan $\delta$
試料番号		<b>亀裂生長速度</b> ■/百万サイク。		::: (減量 g)		Tan δ @ 60°C
	(a	『百万サイク』	り (	g)	@0°C	@ 60°C
対順 145	57. 8	m/ <u>百万</u> サイク。 2.84	1) (  0.	g) . 6952	<b>©</b> 0 ℃ C, 225	<b>@ 6</b> 0°C 0, 129
対照 145 対照 146	57. 8 58. 1	m/百万サイク。 2. 84 2. 52	12) ( 0, 0,	g) .0952 .0887	<b>⊈</b> 0 ℃ 0,225 0,217	@ 60°C
対順 145	57. 8 58. ± 57. 6 56. 3	m/百万サイク/ 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63	レ) ( 0. 0. 0. 0.	g) . 6952	© 0°C 0,225 0,217 0,205 0,221	0, 129 0, 128 0, 123 0, 123 0, 129
対照 145 対照 146 対照 147 対照 148 対照 149	57. 8 58. <u>1</u> 57. 6 56. 3 57. 2	m/百万サイク/ 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39	レ) ( 0. 0. 0. 0. 0. 0.	(952 (6887 (6946 (6927 (6827	© 0°C 0,225 0,217 0,205 0,221 0,234	0, 129 0, 126 0, 123 0, 123 0, 129 0, 142
対照 145 対照 146 対照 147 対照 148 対照 149 対照 150	57. 8 58. <u>1</u> 57. 6 56. 3 57. 2 56. 8	m/ 百万サイク/ 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77	() () () () () () () () () () () () () (	(952 (6887 (6946 (6927 (6827 (6866	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234	0, 129 0, 128 0, 128 0, 123 0, 129 0, 142 0, 150
対照 145 対照 146 対照 147 対照 148 対照 150 対照 151	57. 8 58. <u>1</u> 57. 6 56. 3 57. 2 56. 8 55. 6	m/ 百万サイク。 2. 84 3. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2, 61	() ( 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	(952 (6887 (6946 (6927 (6827 (6866 (6933	©, 220 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241	0, 129 0, 128 0, 128 0, 123 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149
対照 145 対照 146 対照 147 対照 148 対規 150 対規 151 対規 151	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 56, 8 53, 6	m/ 百万サイク。 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2, 61 2. 79	() () 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,	(952 (6887 (6946 (6927 (6827 (6866 (6933 (6857	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 249	0, 129 0, 128 0, 128 0, 123 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155
対照 148 対照 148 対照 148 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 対対 153	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 6 54, 5 55, 4	m/ 百万サイク。 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2. 61 2. 79 3. 12	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	952 0887 0946 0927 0827 0866 0933 0857 0911	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 258	0, 129 0, 128 0, 128 0, 123 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170
村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村 村	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 6 54, 5 55, 4 56, 0	m/ 百万サイク。 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2. 61 2. 79 3. 12 3. 35	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	952 0887 0946 0927 0827 0866 0933 0857 0911 0858	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 258 0, 241	0, 129 0, 128 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147
145 146 147 148 149 150 153 153 153 153 153 153 153 153 153 153	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 6 54, 5 55, 4 56, 0 55, 4	m/ 百万サイク。 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2. 61 2. 79 3. 12 3. 35 3. 63	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	952 0887 0946 0927 0827 0866 0933 0857 0911 0858 0811	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 258 0, 241 0, 254	0, 129 0, 128 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152
148 146 147 148 148 151 152 対対照照照照 153 153 153 153 153 153 153 153 153 153	57. 8 58. 1 57. 6 56. 3 57. 2 56. 8 55. 6 54. 5 55. 4 56. 0 55. 4	m/ 百万サイク。 2. 84 2. 52 2. 03 1. 63 3. 39 2. 77 2. 61 2. 79 3. 12 3. 35 3. 63 3. 55	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	(952 (0887 (0946 (0927 (0827 (0866 (0933 (0857 (0911 (0858 (0811 (0906	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 258 0, 241 0, 254 0, 261	0, 129 0, 128 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152 0, 153
148 146 148 148 148 151 152 対対照照照照照 153 153 153 153 153 153 153 155 157	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 8 55, 4 56, 0 53, 4 54, 9 55, 5	m/ 百万サイク。 2.84 2.52 2.03 1.63 3.39 2.77 2,61 2,79 3.12 3.35 3.63 3.02	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	6952 6887 6946 6927 6827 6826 6933 9857 9911 6858 6811 6906 6931	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 241 0, 249 0, 258 0, 241 0, 254 0, 261 0, 254	0, 129 0, 128 0, 128 0, 123 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152 0, 153 0, 143
146 146 147 148 149 153 153 153 153 153 153 153 153 153 153	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 8 55, 4 56, 0 55, 4 54, 9 55, 5 55, 4	元 五 2.84 2.52 2.03 1.63 3.39 2.77 2,61 2,79 3.12 3.35 3.63 3.63 3.55 3.02 3.81	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	6952 6887 6946 6927 6827 6826 6933 6957 6911 6858 6811 6906 6931 6914	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 241 0, 249 0, 258 0, 241 0, 254 0, 261 0, 261 0, 249	0, 129 0, 128 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152 0, 153 0, 149 0, 155
146 146 147 148 149 149 150 153 153 153 153 153 153 153 153 153 153	57, 8 58, ½ 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 8 55, 4 56, 0 55, 4 55, 5 55, 4 54, 9	m/ 百万サイク/ 2.84 2.52 2.03 3.39 2.77 2.61 2.79 3.12 3.35 3.63 3.55 3.02 3.28	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	6952 .0952 .0887 .0946 .0927 .0827 .0856 .0933 .0858 .0811 .0906 .0931 .0914 .0933	© 0°C 0, 225 0, 225 0, 221 0, 234 0, 234 0, 241 0, 258 0, 241 0, 254 0, 261 0, 254 0, 249 0, 249 0, 249 0, 249	© 60°C 0, 129 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152 0, 153 0, 149 0, 158
146 146 147 148 149 150 153 153 153 153 153 153 153 153 153 153	57, 8 58, 1 57, 6 56, 3 57, 2 56, 8 55, 8 55, 4 56, 0 55, 4 54, 9 55, 5 55, 4	元 五 2.84 2.52 2.03 1.63 3.39 2.77 2,61 2,79 3.12 3.35 3.63 3.63 3.55 3.02 3.81	(L) (0 0,0 0,0 0,0 0,0 0,0 0,0 0,0 0,0 0,0 0	6952 6887 6946 6927 6827 6826 6933 6957 6911 6858 6811 6906 6931 6914	© 0°C 0, 225 0, 217 0, 205 0, 221 0, 234 0, 241 0, 249 0, 258 0, 241 0, 254 0, 261 0, 261 0, 249	0, 129 0, 128 0, 128 0, 128 0, 129 0, 142 0, 150 0, 149 0, 155 0, 170 0, 147 0, 152 0, 153 0, 149 0, 155

図17は、カーボンブラックREGAL 660を含有する上記本発明の試料および対点 試料の分散特性とMis of を示す。図17に示す、選択された本発明の試料と対照試料には上記のようなエキステンダー油を

含有させた。図17に示すデータは、カーポンプラックREGAL 660を含有しかつMMs ar 値が広範囲にわたっている本発明の新規のエラストマー複合体のマクロ分散特性がその対照試料より有意に優れていることを明確に示している。図17に示す、

(16)

カーボンブラックREGAL 660を含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下記式で表される。

MWs e i < 0.6×106の場合、

$$D_{-}(\%) < 1\%$$
 (15)

そして、0.6×10回<MMs at < 1.1×10回の場合、

 $\log (D) < \log(1) - 2.5 \times [MW_{sel} - (0.6 \times 10^6)] \times 10^{-6}$ 

た後でされ、どんなMMs a r の場合でも、1.0%またほこれより優れたマクロ分散行性を達成しなかった。対照的に、カーボンブラックRegal 660を含有しかつMMs a r が0.6×106を超える本発明のエラストマー複合体は、0.2%より小さいD(%)のような優れたマクロ分散を保持している。図17に示す、カーボンブラックRegal 660を含有する小発明の試料10号および各種の対照式料のコンパウド特性および性能特性を以下の表30に示す。本発明の試料10号は、0.69cm/百万サイクルに過ぎないその非常に低い重製生長速度によって示されているように、重製生長に対する特別に優れた抵抗性を有していることが分かる。事実、この本発明の試料はその対応する対照式料よりはるかに優れている。このことは、先に考察したように本発明の試料の一層良好なMMs a r およびカーボンブラックのマクロ分散に大きく起因していると考えられる。

表30 カーボンブラックREGAL 660を55phrの添加量で含有する NRコンパウンドのコンパウンド特性

試料番号	ムーニー精度 ML(1+4) @ 100	一 硬度 1C	E100 (psi)	E300 (ysi)		(%) (%)
177 178 179 179 180 180 181 181 185 186 187 188 189 191 191 191 192		61. 0 63. 2 64. 9 64. 0 61. 0 62. 4 60. 0 60. 3 62. 0 61. 2 61. 1 65. 0	213 232 285 271 206 192 215 223 178 196 166 191 222 193	948 943 1134 1139 945 835 920 936 724 920 956 883 1079 942	4016 4058 4098 3924 4134 4236 3768 4051 4157 4182 4240 4125	618 661 733 638 634 717 666 720 704 674 692
本発明10	83. 1		249		4292	<b>6</b> 34
: _ : _ : _ :						
試料番号	弹性反発 <b>第</b> (cir.	劉生長連度 (百万サイク)				
号 1778 1780 1891 1891 1892 1893 1893 1893 1893 1893 1990 1992 1992 1992 1992 1992 1992 1992	54. 8 55. 6 53. 7 52. 9 51. 9 50. 1 48. 9 47. 5 47. 5 47. 8 47. 5		摩託 り 0.00000000000000000000000000000000000			

図18は、カーボンブラック N 234を含有する上記の木発明の試料および対照試料の分散特性とMPs a) を示す。図18に示す選択された本発明の試料と対照の試料には、上記のようにエキステンダー油を

含有させた。図18に示すデータは、カーボンブラックN234を含有しかつMisor値が高範囲にわたっている本発明の新規のエラストマー複合体のマクロ分散特性がその対照試料より有意に優れていることを明確に示している。図18に示す、カー

ボンブラックN234を含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は下 記念で表される。

MWs e i < 0.35×10回の場合、

$$D_{-}(\%) < 0.3\%$$
 (17)

そして、0.35×106<MWsor<1.1×106の場合、

表31 カーボンブラックN234を55phrの添加量で含有するNRコ ンパウンドのコンパウンド特性

訓料番号	ム・二一粘度 ML(14) ⑥ 100℃	硬度	E 100 (psi)	E 300 (jsc)		EB (%)
273 274 275 276 277 277 277 277 277 277 277 277 277	94. 5 121. 6 121. 4 132. 2 79. 6 96. 3 108. 6 120. 3 76. 4 89. 8 93. 6 196. 7 73. 3 79. 2 77. 8 82. 8	68. 0 69. 6 72. 5 71. 9 68. 5 70. 0 69. 0 71. 5 69. 8 69. 6 71. 8 69. 5 70. 2 71. 5	386 464 561 468 531 406 476 506 506 526 529 531 544 485 500	2077 2239 2545 2259 2453 2439 2131 2273 2774 2416 2384 2586 2574 2486 2595 3440	3994 3864 3857 3874 3863 3852 4027 3896 3867 3788 3831 3830 3834 3799	511 501 472 520 469 469 532 502 451 465 475 484 444 456 499 531
試料番号	<b>弹性</b> 反発 电象(can/ fi	生長速度 1万サイク	… <u>―</u> 摩軽 ル) (g	減量 ; )	Tan o @0℃	Tan ර @ 60°C
对对 273 274 276 276 276 277 277 278 279 279 279 279 279 279 279 279 279 279	45. 9 47. 2 46. 1 46. 9 47. 1 48. 8 45. 4 44. 2 46. 5 46. 4 44. 2 47. 0 45. 6 46. 4 44. 0 45. 1	2, 14 1, 84 1, 70 1, 21 2, 22 2, 40 2, 30 1, 81 3, 10 2, 33 2, 41 1, 99 2, 85 2, 93 2, 08	0.: 0.: 0.: 0.: 0.: 0.: 0.: 0.: 0.:	0563 0583 0538 0620 0628 0634 0680 0646 0508 0537 0554 0551 0569 0647 0698	0. 285 0. 274 0. 284 0. 270 0. 305 0. 299 0. 306 0. 298 0. 293 0. 307 0. 309 0. 309 0. 304 0. 295 0. 294 0. 305 0. 316 0. 310	0, 183 0, 173 0, 177 0, 173 0, 196 0, 198 0, 198 0, 174 0, 182 0, 186 0, 190 0, 178 0, 178 0, 177 0, 187 0, 198 0, 198

図19は、添加量55phrの前述のN110カーボンブラックを含有する、本発明及び対照試料の分散性及びMs。」を示している。図19に示されたデータは、N110カーボンブラックを含有する本発明の新

規なエラストマー複合体のマクロ分散性が、MMs。r 何の広範な範囲にわたって、 対照試料のそれに比べて有意に優れていることを明確に示している。 №110カー ボンブラックを含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、図19に 示されたように、下記式で説明される:

$$D_{-}(\%) < 0.5\% \tag{19}$$

(MMs o 1 < 0.35×10<sup>6</sup>の場合) :及び

$$\log(1)) < \log(0.5) + 2.5 \times [MY_{5 \text{ o}}] \quad (0.6 \times 10^6)^{\circ} \times 10^{-6} \tag{20}$$

(0.35×106 < MWs or < 1.1×106 の場合) である。対照試料は、いかなるMWs or でも、例え0.35×106以下のMWs or に低下するのに充分なだけ乾燥混合した後であっても、0.5%のマクロ分散性は達成されなかった。対照的に、N110カーボンブラックを含有し、かつ0.35×106以上のMWs or を有する、本発明のエラストマー複合体は、0.2%未満のD(%)のような、優れたマクロ分散を有する。

図20は、添加量33phrの前述のN351カーボンブラックを含有する、本発明の試料22及び対照試料の分散性及びM6。」を示している。図20に示されたデータは、N351カーボンブラックを含有する本発明の新規なエラストマー複合体のマクロ分散性が、M9。」「債の広範を範囲にわたって、対照試料のそれに比べて、有意に優れていることを明確に示している。N351カーボンブラックを含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、図20に示されたように、下記式で説明される:

$$D_{-}(\%) < 0.3\% \tag{21}$$

(MMs a) < 0.55×104の場合) :及び

$$\log (D) < \log(0.3) + 2.0 \times [MM_{5.0.1} - (0.55 \times 10^6)] \times 10^{-6}$$
 (22)

(0.55×106<MMsor<1.1×106の場合)である。対照試料は、いかなるMMsorで も、例え0.35×106以下のMMsorに低下するのに

充分なだけ乾燥混合した後であっても、1.0%のマクロ分散量が達成されなかった。対照的に、N351カーボンブラックを含有し、かつ0.35×10°以上のMB。」を有する、本発明のエラストマー複合体は、D(%)0.2%未満のような、優れたマクロ分散を有する。

図21は、添加量55phrの前述のSTERLING(登録商標)6740カーボンブラックを含有する、本発明の試料No. 23及び対照試料の分散性及びMNs。」を示している。図 21に示されたデータは、STERLING(登録商標)6740カーボンブラックを含有する

本発明の新規エラストマー複合体のマクロ分散性が、Masor 値の広範を範囲にわたって、対照試料のそれに比べて、有意に優れていることを明確に示している。
STERLING(登録商標)6740カーボンブラックを含有する本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、図21に示されたように、下記でで説明される:

$$D_{-}(\%) < 0.1\% \tag{23}$$

(MWs a) < 0.3×106の場合) :及び

$$\log (1)) < \log(0.1) + 2.0 \times (MY_{5 \circ 1} - (0.3 \times 10^{6})) \times 10^{-6}$$
 (24)

(0.3×106<MMs a) <1.1×106の場合)である。対照試料は、いかなるMMs a) でも、例え0.3×106以下のMMs a) に低下するのに充分なだけ乾燥混合した後であっても、0.1%のマクロ分散性は達成されなかった。対照的に、STERLING(登録商標)6740カーボンブラックを含有し、かつ0.3×106以上のMMs a) を有する、本発明のエラストマー複合体は、D(%)0.2%未満、更には0.1%未満でさえあるような、優れたマクロ分散を有する。図21に示されたSTERLING(登録商標)6740カーボンブラックを含有する、本発明の試料No.23及び対照試料の化合物の特性及び性能特性を、下記表32に示した。本発明の試料No.23は、その角裂生良速度値が、わずか0.91cm/ミリオンサイクルであることによって示されるように、角裂生良

に対する良好な抵抗性を有することが認められる。実際には、本発明の試料は、 対応する対照試料よりも、非常に優れている。これは、前述のように、本発明の 試料中のカーボンブラックのより良いMMs or 及びマクロ分散に大きく起因すると 考えられる。

表32 55phrの添加量での、STERLING(登録商標)6740カーボン ブラックを含有するNR化合物の化合物特性

∰⊈i. No.	ム・二・結婚 ML(114) @ 10		E100 (psi)	E300 (psi)	引張り強き (psi)	<b>EB</b> (%)
対照412	75, 50	65, 1	467. 0	2308.0	3519	451
刘服413	85, <b>7</b> 0	65. 7	4 <del>6</del> 9. 0	2314, 0	3655	479
対照411	92, 70	67.7	462.0	2243, 0	3613	472
対照415	99, 60	66.9	492.0	226 <b>0.</b> 0	3572	477
対照416	7 <b>4.</b> 50	65, 8	521, 0	2468. 0	35 <b>8</b> 4	445
対照417	78, 20	67.1	502. 0	2372, 0	3445	436
対照418	82, 00	66, <b>0</b>	534, 0	2418. 0	3604	453
対照419	86. 10	67.8	540.0	2330, 0	36 <u>2</u> 0	475
対照420	66, 70	66 <b>. 0</b>	515, 0	2332. 0	34 <b>6</b> 8	444
対照421	76. 30	67.8	438.0	2310, 0	3375	440
対照422	78, 30	65 <b>. 8</b>	54 <b>8, 6</b>	2440. 0	354 <b>9</b>	442
対照/123	82, 10	66.5	487, 0	2219, 0	3452	466
対照424	64, 80	6 <b>6.</b> 5	541, 0	2248.0	3397	445
対照425	67, 50	66.5	524. 0	2374, 0	3474	445
対照426	70, 30	6 <del>6</del> . 9	546, 0	2351.0	3428	446
対照427	71, 00	66. 1	554. 0	2340. 0	3322	435
本発明23	110, 50	64 <b>. 8</b>	45 <b>3,</b> 6	2241. 0	3324	443
证料 No.		in the second of the second o		<b>減量</b> g) (	Tanó ඔCC	Tan გ @ 60°C
	(ca/	million cycl	les) (	g) (	90°C	@ 60°C
試料 No		million cycl 5.04	les) ( 			
対照412	59. 8 60. 0 59. 3	5.04 3.63 3.96	les) ( 0. 0. 0.	g) ( . 127 . 128 . 126	© 6°C 0. 202 0. 203 0. 203	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114
対照412 対照413 対照414 対照415	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8	5.04 3.63 3.96 4.58	(es) ( 0. 0. 0. 0. 0.	g) . 127 . 128 . 126 . 12	© 0°C 0, 202 0, 208 0, 208 0, 217	@ 60°C 0. 107 0. 108 0. 114 0. 118
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67	(es) ( 0. 0. 0. 0. 0.	g) (127 , 128 , 128 , 126 , 12 , 117	© 0°C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 188	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対脱417	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.67	(es) ( 0. 0. 0. 0. 0. 0.	g) (127 , 128 , 128 , 126 , 12 , 117 , 112	@ 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202	0. 107 0. 108 0. 114 0. 118 0. 094 0. 104
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対版417 対照418	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0 59. 3	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	g) (127 128 126 126 12 117 112 125	@ 0 °C 0, 203 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対照417 対照418 対照419	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0 59. 3 57. 5	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	g) (127 . 128 . 126 . 12 . 117 . 112 . 125 . 122	© 0 °C 0, 203 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対照417 対照418 対照419 対照420	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23	0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	g) (127 128 128 126 12 117 112 125 122 131	© 0 °C 0, 203 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218 0, 204	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117 0, 099
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対照417 対照418 対照420 対照420 対照421	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0 38. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.84	0. (es) ( 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	g) (127 128 128 126 127 117 112 125 127	© 0 °C 0, 203 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218 0, 204 0, 206	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117 0, 099 0, 105
対照412 対照413 対照414 対照415 対照416 対照417 対照418 対照420 対照421 対照422	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 3 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.84 3.93	0. (es) ( 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	g) (9) (127) (128) (126) (127) (117) (112) (126) (127) (126)	© 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218 0, 204 0, 206 0, 210	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117 0, 099 0, 106
対照412 対照413 対照解414 対照解415 対照解416 対照照419 対照照420 対照照422 対照423	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 0 59. 2 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8 56. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.54 3.98 3.85	0. (es) ( 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0	g) (9) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (13) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (12	© 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218 0, 204 0, 206 0, 210 0, 213	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117 0, 099 0, 106 0, 117
対照412 対照照413 対対照照415 対限照415 対限照416 対規照417 対規照420 対照照420 対照照422 対照第423 対照8424	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 0 59. 2 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8 56. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.54 3.98 3.85 4.54	0.000 (0.	g) (9) (12) (12) (12) (12) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (13) (13) (13) (13) (13) (13) (13	© 6 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 218 0, 204 0, 206 0, 210 0, 213 0, 200	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 117 0, 099 0, 106 0, 117 0, 104
対照412 対照照413 対対照照414 対対照照415 対対照照416 対対照照420 対対照照420 対対照照423 対対照照423 対対照第423 対対照第423	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8 56. 8 58. 3 58. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.54 3.93 3.85 4.54 3.65	0.00 0.00 0.00 0.00 0.00 0.00 0.00 0.0	g) (9) (12) (12) (12) (12) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12)	© 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 204 0, 206 0, 213 0, 200 0, 207	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 105 0, 107 0, 109 0, 105 0, 106 0, 117 0, 100
対域412 対域域413 対域414 対域域415 対対対域域域域419 対域域域域域420 対域域域域域域域域域域域423 対域域域域域域域域域域域域域域423 対域域域域域域域域域域域域域域域域423 对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对对	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8 56. 8 58. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.92 4.23 3.54 3.93 3.85 4.54 3.65 3.97	0.000 (0.	g) (9) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (12) (12	© 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 188 0, 202 0, 204 0, 204 0, 206 0, 213 0, 200 0, 207 0, 211	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 104 0, 105 0, 107 0, 106 0, 117 0, 100 0, 110 0, 110
対照412 対照照413 対対照照414 対対照照415 対対照照416 対対照照420 対対照照420 対対照照423 対対照照423 対対照第423 対対照第423	59. 8 60. 0 59. 3 58. 8 60. 0 59. 3 57. 5 60. 0 58. 8 59. 8 56. 8 58. 3 58. 8	5.04 3.63 3.96 4.56 5.67 4.23 3.22 4.23 3.54 3.93 3.85 4.54 3.65	0.000 (0.	g) (9) (12) (12) (12) (12) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12) (13) (12)	© 0 °C 0, 202 0, 203 0, 203 0, 217 0, 183 0, 202 0, 204 0, 204 0, 206 0, 213 0, 200 0, 207	@ 60°C 0, 107 0, 108 0, 114 0, 118 0, 094 0, 105 0, 107 0, 109 0, 105 0, 106 0, 117 0, 100

#### 追加実施例:加疏された試料

前述の選択された本発明の試料及び対応する対照試料の両方を含む、多くのマスターバッチ試料を、加備しかつ試験した。特に、試

料は、前記表8のステージ目に従って、表9の配合を用いて混合し、最終化合物を生成した。その後各々の最終化合物は、実質的に完全な加硫が達成されるまで、標準的手法を用い、約150°Cで、型の中で加硫した。この加硫された試料の性

能特性は、前述の測定法に従って、すなわちASTM D3629 94による回転屈曲試験機を用いて、各々の角裂生長速度を測定することによって、決定した。角裂生長を測定するために使用した回転屈曲試験機は、市販のものであり、かつ周知である。例えば、1995年の国際型本会議議事録(the Proceedings of the International Rubber Conference)(種戸、日本)文書No.27A = 6(p. 472 475)において議論されている。これらの化合物は、100℃及び屈曲角45°で試験した。一般に当業者は、このような化合物における角裂生長速度が、天然ゴムの分子量及びカーボンブラックの分散性によって、すなわち、核化合物のMMs。」及び10(%)値によって影響されることを認めている。より高いMMs。」及びより低い10(%)に、低下した角裂生長速度に良く相関している。本発用の試料No. 9,10及び16に関する角裂生長速度及び他の情報は、下記表33に示した。対応する対照試料に助する複裂生長速度及び他の情報は、下記表33に示した。対応する対照試料について、Tan δ max@60℃を測定した。本発用の試料に関するTan δ max@60℃を測定した。本発用の試料に関するTan δ max@60℃を測定した。本発用の試料に関するTan δ max@60℃

表36に示された対照試料No.444~450は、RSS1天然ゴムを用いる対照試料コードM2D1について、先に示した方法に従って製造した。全ては、5 phrのエキステンダー油と共に、表36に示した添加量(phr)のカーボンブラックN234を使用した。

表33 本発明の試料の亀裂生長速度

本発明試料 No.	(3)/添加量/油	М <sup>аст</sup> (К)	CCR(cm/million cycles)
g	<b>%32</b> 6/55/0	666	0. YY
10	<b>k66</b> 0/55/0	678	0, 69
16	N234/55/0	500	0, 88

表34 対照試料の亀製生長速度

コード	N 234/85phr/ 0		RSS1
	試料番号	₩, , ; (K)	CGR (cm/million cycles)
M 1 D 1	273	588	2.14
M 1 D 2	274	669	1.84
M 1 D 3	275	759	1.70
M 1 D 4	278	896	1. 21
M 2 D 1	2 <b>7</b> 7	580	2. 22
M 2 D 2	278	602	2, 40
M 2 D 3	279	631	2.00
M 2 D 4	280	667	1.81
M 3 D 1	281	457	3.1C
M 3 D 2	282	476	2.33
M 3 D 3	283	493	2.41
M 3 D 4	284	495	1, 99
$M \leq D/1$	285	3"2	2.99
$M \not= D/2$	286	382	2.85
M 4 D 3	287	381	2.93
M 4 D 4	238	403	2, 39

表34 対照試料の亀裂生長速度(続き)

⊐ ← ¥	N 325/55pb	ir/ 0	RSS1
	-   武料番号 	(K)	CGR (cm/million cycles)
M 1 D 1	145	550	2, 84
M 1 D 2	146	636	2. 52
M 1 D 3	147	650	2,03
M 1 D 4	148	724	1.63
M 2 D 1	149	517	3, 39
M 2 D 2	150	572	2, 77
M 2 D 3	151	613	2, 61
M 2 D 4	152	69€	2, 79
M 3 D 1	163	489	3, 12
M 3 D 2	154	521	3, 35
M 3 D 3	155	5 <b>0</b> 4	3.63
M 3 D 4	156	538	3, 58
$M \not= D/1$	7.37	415	3.02
$M \neq D/2$	188	447	3, 81
$M \not= D/3$	1 8 9	466	3, 23
M 4 D 4	160	469	3, 19

表34 対照試料の亀裂生長速度(続き)

⊐ – k,	<b>R</b> egal660/5	5phr/0	Boot
			R\$\$1
	試料番号	(K) MM'''	CCR (cm/million cycles)
MIDI	177	674	
M 1 D 2	178	792	2. 34
M 1 D 3	179	891	2.78
M 1 D 4	180	676	2. 98
M 2 D 1	181	598	3, 41
M 2 D 2	182	302	3, 11
M 2 D 3	183	397	<b>3</b> , 15
M 2 D 4	184	359	3. 11
M 3 D 1	185	478	4, 59
M 3 D 2	186	506	4, 06
M 3 D 3	187	o62	8, 58
M 3 D 4	188	559	8. 79
M 4 D 1	189	401	5, 71
M 4 D 2	190	426	4.14
M 4 D 3	191	466	
M 4 D 4	192	449	4. 78

表35 本発明の試料の60℃でのTan &

本発明の記料 No.	' N234 添加量/油(phr)	MA <sup>*ol</sup> (K)	Max Tan∂@60°C
24	: 48/5	569	0. 169
25	58./ 5	485	0, 178
26	58,45	447	0. 191
27	<b>63</b> ∕5	403	0.219
28	€8∕5	378	0, 227
29	49/5	€18	0, 159
30	54/15	482	0, 171
31	63/5	390	0. 228
32	<del>8</del> 5∕/5	325	0, 224

表36 対照試料の60℃でのTan δ

				٥
試料 Yo	Y KY (K)	D (%)	N234添加量/抽(phr)	Wax. Tank (@60°C)
444	428	0, 25	37/5	9, 154
445	i 409	0. 37	$42 \angle 5$	0, 170
446	379	0.42	46 🗸 5	<b>5. 179</b>
447	361	0. 58	51 × 5	0. 195
448	366	0. 27	53./ 5	0. 212
449	290	0, 39	58 <sub>.</sub> / 5	0. 215
450	296	0. 64	$69 \times 5$	0. 245
	<u></u>			

表33及び34の比較から、本発明の試料により、対照試料と比べて、有利に低い 無裂生長が達成されたことが認められた。低い無裂生長速度は、良好な耐久性、 及びタイヤ用途などを含む非常に多くの用途に関連した特性に相関している。更 に、表35及び36を比較することで、本発明の試料により、より良いTan が、max値 、すなわち

対照試料の値よりも低い値が達成されることを認めることができる。従って、低

い転がり抵抗に応じて低いヒステリシスが要求される、例えばタイヤ用途などを 含む、非常に多くの製品用途のために、本発明の試料により改善された性能が達 成される。

本発明のエラストマー複合体の有利な性能特性は、図22に図示された、N234方 ーボンブラックを含有する本発明の試料No. 16の角製生長速度、及び対応する対 - 規試料、No. 273~288の試験結果によって例訂される。特に図22は、対照試料に 関するMB。 みび角裂生長速度の間の利関、更には本発明のエラストマー複合体 における優れたマクロ分散の有利な影響を明確に示している。図22 24及び表33 36に示されたMMs ar 値が、加硫前のマスターバッチ材料に関するものであるこ とは理解されなければならない。加硫された材料の分子量は、未加硫のマスター バッチのMys or 値に良く相関すると理解される。Mys or が約0.25×10º~0.6×10º の範囲である対照試料の亀裂生長速度は、MMsorに対する直線の相関関係によく 一致していることが認められる。対照的に、Mg or が0.5×104である本発明の試 料No.16は、対応するいずれの対照試料よりも、本発明の試料がより良いマクロ 分散D(%)であるために、有意に良好な(すなわち、低下した)亀裂生長速度 を有する。これは更に、図23に示された同様のことによって確認され、ここでは N326カーボンブラックを含有する本発明の試料No. 9の角裂生長速度が、対応 するあらゆる対照試料No. 145~160よりも、有意に低く、かつその相関直線より もかなり低いことが認められる。同様に図24においても、本発明の試料No. 10の 優れたマクロ分散が、対応する対照試料No. 177~192によって確立された亀裂生 長速度及びMMs。」の相関直線のはるかに下方に位置する、角裂生長速度の結果に ついて認められる。図25において、本発明の試料No. 24~28及び本発明の試料No. 29

~32について、最大 $Tan \delta$  は、対応する対照試料No.444~450よりも、より良く、するわち低く、図示される。

本発明のエラストマー複合体に関する前述の優れた亀製生長の結果は、単に疲労特性の利点を示すのみではなく、優れた引製及び切削り(cut and chip)の抵抗性のような、破壊特性における利点も指摘している。本発明のエラストマー複

合体に関する前述の優れたヒステリシスの結果は、単に自動車タイヤの用途での 低い転がり抵抗(及び対応する高い燃費)を示すのみではなく、発熱減少のよう な、性能特性に関する有利な改善点も指摘している。これらの優れた特性、疲労 及び引袈抵抗性、低いとステリシス、少ない発熱などのうちのひとつ以上が、木 発明のエラストマー複合体を、タイヤ用途のような商業的用途、及び工業用ばム 製品における使用に良く適したものにしている。タイヤ用途に関して、本発明の 様々な好ましい実施族様が、特に下記のような使用に良く適している:タイヤト レッド、特にラジアル及びバイアストラックタイヤ、オフロード ( "ORT") タ イヤ、飛行機用タイヤなどのためのトレッド;サブトレッド;ワイヤスキム;サ イドウォール;更生タイヤ川のクッションゴム;並びに、類似のタイヤ川途であ る。本発明の様々な好ましい実施態様によって達成された優れた性能特性は、改 善されたタイヤの耐久性、トレッド寿命及びケーシング寿命、自動車のより良い 燃費及び他の利点を提供する。工業用ゴム製品に関しては、本発明の様々な好ま しい実施態様が、特に下記のよう巻便用は、特に良く適している:ニンジンマウ ント、ハイドロマウント、橋梁支承及び地震免扱装置、タンクトラック又はトレ ッド、採鉱ベルト及び類似の製品用途である。本発明の様々な実施態様によって 達成された優れた性能特性は、このような製品用途に関して、改善された疲労寿 命、耐久性及び他の利点を提供する。

図26~29は、一般に図8に対応している、カーボンブラックの形態、ストラクチャー(DBPA)及び表面積(CTAB)を図示している。図26のカーボンブラックの形態領域261は、現在OTRタイヤトレッド用途のために商品化に使用されているカーボンブラックを含んでいる。矢印262は、領域261が、木発明に従って、有利に拡張され得る方向を示している。切削り抵抗、亀裂生長抵抗及び引裂抵抗のような性能特性は、一般に向きのついた矢印262対照の方向に改善すると理解されるが、しかし従来は、天然ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような大きい表面積、ローストラクチャーのカーボンブラックの使用から生じる貧弱なマクロ分散に起因した、これら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。木発明のエラストマー複合体は、それらの優れたマクロ分散及び間5。」の点で、著しく

改善されたOTRトレッド材料を達成するために、向きのついた矢印262で示されたような、このようなローストラクチャー、大きい表面積のカーボンブラックを使用することができる。

回様に、図27のカーボンブラックの形態領域271は、トラック及びバス(エ/B)のタイヤトレッド用途のために、現在商品化に使用されているカーボンブラックを含む。矢印272は、領域271が、本発明に従って、有利に拡張され得る方向を示している。耐磨耗性のような性能特性は、一般に向きのついた矢印272対象の方向に改善すると理解されるが、しかし従来は、該ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような大きい表面積のカーボンブラックの使用から住じる貧弱なマクロ分散に起因した、これら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。本発明のエラストマー複合体は、それらの優れたマクロ分散及び間よりの点で、改善されたエ/Bトレッド材料を達成するために、向きのついた矢印272で示されたような、このような大きい表面積のカーボンブラックを使用することがで

きる。

同じく図28のカーボンブラックの形態領域281及び283は、各々、トレッドペース及び乗用者車(PC)用タイヤトレッド用途のために、現在商品化に使用されているカーボンブラックを示している。向きのついた矢印282及び284は、各々、領域281及び283が、本発明に従って、有利に拡張され得る方向を示している。発熱性(HBU)及び転がり抵抗のような性能特性は、一般に向きのついた矢印282対象の方向でトレッドベースを改善すると理解されるが、しかし従来は、該ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような大きい表面積、低ストラクチャーのカーボンブラックの使用から生じる、貧弱なマクロ分散に起因したこれら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。同様に、転がり抵抗のような性能特性は、般に向きのついた矢印284対象の方向でPCトレッドを改善すると理解されるが、しかし従来は、該ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような大きい表面積、低ストラクチャーのカーボンブラックの使用から生じる貧弱なマクロ分散に起因した、これら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。本発明のニラストマー複合体は、それらの優れたマクロ分散及びこのようなエラストマー複合

体中の任意の高分子保存剤の点で、改善されたトレッドベース及びPCトレッドを 達成するために、各々、矢印282及び284で示されたような、大きい表面積、低ス トラクチャーのカーボンブラックを使用することができる。

同様に、図29のカーボンブラックの形態領域291, 293及び294は、各々、サイドウォール、エペックス及びスチールベルトタイヤの川途のために、現在商品化に使用されているカーボンブラックを示している。向きのついた矢印292及び295は、各々、領域291及び294が、本発明に従って、有利に拡張され得る方向を示している。

発熱性 (HBU) 及び疲労寿命のような性能特性は、向きのついた矢印292対象の方向でサイドウォールを改善すると理解されるが、しかし従来は、該ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような低ストラクチャーのカーボンブラックの使用から生じる、貧弱なマクロ分散に起因したこれら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。同様に、発熱性、加工及びワイヤ接着のような性能特性は、一般に向きのついた矢印295対象の方向でスチールベルトエラストマー材料を改善すると理解されるが、しかし従来は、該ゴムの分子量の減少、及び/又はこのような大きい表面積、低ストラクチャーのカーボンブラックの使用から生じる貧弱なマクロ分散に起因した、これら及び他の特性の低下の代償であると理解されていた。本発明のエラストマー複合体は、優れたマクロ分散及びこのようなエラストマー複合体中の任意の高分子保存剤の点で、改善されたサイドウォール及びスチールベルトゴム材料を達成するために、各々、矢印292及び295で示されたような、大きい表面積及び/又は低ストラクチャーのカーボンブラックを使用することができる。

**追加の実施例:他の充填剤を含有する好ましい実施態機及び対照試料** 

本発明のある好ましい実施族様に従うエラストマー複合体の別の試料、及びそれに対応する対照試料を製造した。これらの第一の群は、先にシリコーン処理したカーボンブラックと称された型の、多相凝集 (multiphase aggregate) 充填剤を用いた。

特に、発明の試料No.33~34は、Cabot Corporation(ビレリカ、マサチューセ

ッツ州)から市販されている、ECOBLACK(登録商標)シリコーン処理したカーボンプラックを使用した。このようなECOBLACK(登録商標)充填剤は、カーボンブラックN234に類似した、形態学的特性、すなわちストラクチャー及び表面積を有する。試料

No.33は、45phr ECOBLACK(登録商標)充填剤を使用し、かつエクステンダー 油は使用しなかった。試料No.34は、68phr ECOBLACK(登録商標)充填剤を使用 し、かつエクステンダー油は使用しなかった。天然ゴム並びにカーボンブラック 及びシリカ充填剤の配合物を含有する、本発明のエラストマー複合体に関する、 様々な製品用途のための典型的な充填剤及びエクステンダー油の使用については 、表37に示した。表37において示された組成物中のシリカ充填剤の使用は、典型 的にはカーボンブラック充填剤の同様の量で置き換えられるであろうことが即解 されなければならない。

表37 タイヤ用途のための典型的MR配合物

用途	カーボンブ ラック型	カーボンプ ラック添加量	油添加量	シリカ添加量
トラック/	N110, N115, N121,	40 — 60phr	0 —23թհո	0 — 1Cphr
バストレッド	N134, N220, N299			
のTRトレッド	N110, N115, N220,	45 55phr	$5 \times 10 \mathrm{phr}$	5 20phr
	N231			
スチール	V356	50 75phr	0 ծրիր	0 2Cphr
ベルト				
トラックノバス	N330, N550	40 60phr	0 · · 20phr	
トレッドベース				
カーカス	N328, N330, N550	40 60phr	5 3Jphr	
プライ				
サイドウォール	N330, N351, N550	$30-60 \mathrm{phr}$	5 -33թհո	
エベックス	N328, N330, N351	50—90phr	$0-20 \mathrm{phr}$	
LRIK PC	N234, N299, N339	40 <b>60phr</b>	0 30 <b>phr</b>	
ŀ V y F	N343, N347, N351			

試料の第二の群は、シリカ及びカーボンブラックの配合物又は混

合物を使用した。カーボンブラック及びシリカ充填剤の配合物を使用する本発明の実施態様において、これらが、少なくとも約60:40の重量比で使用されることが一般に好ましい。すなわち、このマスターバッチ中での該エラストマーの良好な凝固を達成し、かつシリカの再凝集を減少又は阻止するためには、カーボンブラックは、該充填剤を少なくとも約60重量%含むことが好ましい。特に、No. 35~38の実施例においては、表40に示されたように、カーボンブラックは、PPG Industries(ピッツバーグ、ペンシルバニア州、米国)から入手可能な、表面積BE Tが150m2/g)表面積DBPAが190mils/100g,pH7及び主要な粒度が19nmである、特定のSi0z 充填剤HiSi1(登録商標)233と共に使用される。

本発明の試料の全て、すなわち、追加の本発明の試料No.33~38は、前述の本 発明の試料No. 1~32において使用された方法及び装置に従って、製造した。本 発明の試料No.33から38の各々において使用された方法及び装置の詳細は、下記表38に示した。試料No.33~38において使用されたフィールドラテックス(field latex)又は濃縮物は、場合によって、前記表24に示したものと類似している。表38のデータは、前述の本発明の試料No. 1~32に関して表25において提供されたものと対応していると理解される。表38に列記されたカーボンブラック充填行"CRX2000"とは、前述のECOBLACK(登録商標)シリコーン処理したカーボンブラックのことである。

			_,					_	<b>.</b> .								т—-				_				
		(B)建压	ၞ႞ ၖ	ত জ ই ব	ကြောမ ကြော်ရ ကြောင်	রু বু মূ ত ক			(17) 中華				i ei ei i mieri	1		H (188 E (188 H	17300	14500	900 900 900 900 900 900 900 900 900 900	926	6 m 4	4 新型型	   8	9 9 9 9	85.8 
	7.878.0	4.7.4年	(111)			വരം വര്ഗ്	: !	(2)图 表现		 	(2)	. — 3.6	oper in in in	1.000	\ 	H (188	010	n <b></b>	ကျ တုံးက	— 0 (vi) 3 (vi)		(15/年)	39	SE.	왏홌뜣
		西		0,023 0,023	526	288 300 300	!	-	(5.1) 直径(	<u> </u>    		=		÷	1	シップン 建度(fulsed)	 				ļ İ	原形の建築	1.35	25 (6)	1 / / / / / / / / / / / / / / / / / / /
		1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1	급 본		i kapi da	-00		(X)	が対				i ed ed								   	· 	1 '		<b>⊢</b> – ⊢
			(1915) (1915) (1915)		'E'	nes	イ産業	跃	(四) 製車	88	8	3.5 ⇒-	ം കുറു ഗാന ഹെക്			(宋文) ( <b>2</b> (宋文)	F.eld	## 	변 2 3 4	Const	玩化	上模型の米面 (名)			ශික්ව ල්ල්ල
	<del>15</del>		1	—				_	글(iii)	 				-	  -   ir	ex (per )					松	新 (1) (2)	935	95 48	다양말 다양말
	1911年	$ \psi $	MAC INTER SHIT	÷.	थ <b>ा</b> − प्र	- 63 61	İ	       	- K/I	) <b>1</b>				    -	(校 - 2017)	_	20	9 6		-		5, 3€)	  -	 20	മതര
	Cabut HTVストル:液角溶	カーポンプラッ	## J	23	98.5	25 25 25 25 25 25 25 25 25 25 25 25 25 2		採	विद्धित्त				్ట్ లేత	<) 및	1	MPP (polar)		၈၈ ဗေ			   <del> </del>	職会 を 大国	<u>                                   </u>	- <del>1 4</del>	(현실로 
	\ <u>\{</u>	   	7			SIE	   <del>-</del>	i	(ac) #i				 ಇಂದ ಪ್ರಕಾರ		 	SPICIONS I	LT.	160			装	対数タルイポイ 心を動(%)	77.5	Đ¢: Sir-i: Bir-i	ಣರಾ⊢ ಪಕ್ಕೆ ಪ್ರಕ್
の評価	! !	. イの極端	く ファラン/小説 ・ ナッテン/小説 ・ ケック/シッ物 ・ スククナク	] :	   ₹   X	12				. K	r—r—úri			·		医 (1)	<u> </u>								
法発出過剰の製造の詳細		7.00			.α.α. -2, -3 	12.4 2.4 3.4 3.4 4.4 5.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7.4 7		182	(明)張遼				9.00 13.00 10.00 1		· 如   -   -			ತರು ಶಿಜ್ರಾ			I	¥ ⊞a Sisi		1631	2000 2820 2600
85.38 (Ac)	0.0388 ₩	子がある	•	88	88	86.88	5   8   1	の           	를 참 동	Ħ	अ: 	និសី	ក្រឡ កែទាំ		本第4巻の	STATES:	87	88	### ****	: FF		#3555 #4555 #4556	83	2	***

対照試料451~498は、前述の対照試料No. 1~450に示された方法及び装置に 従って製造した。451~466のマスターバッチに関する、製造コード(先の表13を 参照のこと)、充填剂添加量、ゴム、MMs or 及びマクロ分散は、下記表39に示す 。本発明の試料No. 33~38に関する、製造コード、充填剂添加量、ゴム、MMs or 及 びマクロ分散値は、下記表40に示す。表39から、対照試料451~466は、本発明の 試料No. 33及び34の組成に一致していることがわかる。同様に、対照試料467~49 8は、本発明の試料No. 35~38の組成に一致している。

表39

$\neg - F$	CRX2000/44	/0		CRX2000/58/0			
		RSS1			RSS.		
	試料番号	М¥ (К)	D (%)	試料番号	₩ (K)	D (%)	
M 2		909			909		
М 3		590			590		
M2D1	451	461	3, 48	459	333	8. 61	
M 2 D 2	452	474	3, 68	460	392	5, 71	
M2D3	453	489	7. 17	461	388	9, 48	
M 2 D 4	454	515	6. 28	462	394	8.05	
M3D1	455	393	2, <b>89</b>	463	280	2, 23	
M 3 D 2	456	422	2, 87	464	298	2, 13	
МЗD3	457	435	4, <b>1</b> 5	465	350	4, 05	
M 3 D 4	458	4 <b>49</b>	3. 23	466	379	7. 22	

#### 表40 本発明試料のゾル分子量及び未分散面積

本発明	CB/添加量/油	NV said	Ð
試料番号		(K)	(%)
33	CRX2000/44/0	380	0, 18
34	CRX2000/58/0	448	0.10
35	N920/HiSil232/43/10/5	500	0.14
36	N234/HiSil233/40/10/0	490	0.36
37	N234/HiSi1233/30/20/0	399	0.23
38	STERLING0740/Hisi1233/30/20/0	354	0.39

$\Box = S$	N220/TiSi1	233/43/00/	/5	N234/IIIIS11233/40/10/0			
	RSS1			RSS.			
	試料番号	(K)	D (%)	試料番号	₩ (K)	D (%)	
M 2	•	803			909		
М 3		601			590		
M 2 D 1	467	493	1, 51	475	443	8, 74	
M 2 D 2	468	537	2, 61	476	517	10. 9	
M 2 D 3	469	523	2, 82	4 <b>7</b> 7	569	12, 5	
M 2 D 4	470	615	2, 95	178	592	8, 25	
M 3 D 1	471	417	0, 95	479	358	6, 65	
M 3 D 2	472	438	1, 40	480	420	13, 8	
M 3 D 3	473	433	2. 15	481	516	13. 9	
M 3 D 4	474	485	2, 22	482	447	7, 25	

コード	N234/H:Si1	233/ <b>30</b> /20/	/0	STERLING6740/BiS:1288/80/20/0				
		RSS1			RSS1			
	<b>計料番号</b>	(K)	D (%)	計料番目	MM su (K)	D (%)		
M 2		909			909			
М 3		590			590			
M2D1	483	394	4, 37	491	430	3, 77		
M 2 D 2	484	507	5, 66	192	488	4 <b>. 39</b>		
M 2 D 3	485	526	4 <b>. 7</b>	193	517	5, 37		
M 2 D 4	186	568	5, 94	494	563	4. 66		
M 3 D 1	487	377	8, 39	195	375	3, 5		
M 3 D 2	488	365	4, 49	496	380	2 <b>. 73</b>		
M 3 D 3	489	3 <b>7</b> 6	5. 67	497	419	2. 72		
M 3 D 4	490	432	5, 26	498	448	3. 29		

本発明の試料No. 33~38のマスターバッチにおける優れたカーボンブラック分散は、表39 41に示された、マクロ分散性及びMWs or 何の比較によって明らかになる。ECOBLACK(登録商標)シリコーン処理したカーボンブラックで製造された本発明の試料No. 33 34、及び対応する対照試料は、図30において、片対数プロットで比較した。優れたカーボンブラック分散が、本発明の試料に関して、図30において認められ、これは、本発明の内容に従ったエラストマー複合体の好ましい実施態様を表している。本発明の試料は、図30の線301の下方に位置する一方で、対照試料は、線301の上方に位置し、貧弱な分散を有している。実際には、図30に示された好ましい実施態様は、MWs or が0.4×10%を有利に超えるような値であっても、0.2%のD(%)位まで低下した。図30に示されたデータは、ここで明らかにされた、シリコーン処理されたカーボンブラックを含

有する、新規なエラストマー複合体のマクロ分散性が、従来の乾燥混合法と同等 の成分を使用することで達成されるものよりも、顕著に優れていることを明確に 表している。図30に示された本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、下 記式で説明される:

$$D_{-}(\%) < 1.0\% \tag{25}$$

(MNs a) < 0.4×100の場合) :及び

D(%)は、10ミクロン以上の欠陥について測定された未分散面積の割合であること、及び 1%が、これらの本発明の好ましい実施態様に従うマスターバッチに関するマクロ分散性閾値であることが認められるであろう。すなわち、いかなる乾燥素練りされたマスターバッチも、あらゆる欄s。」において、例え0.4×10<sup>6</sup>以下の欄s。」に低下するのに充分をだけ乾燥混合した後であっても、マクロ分散性1.0%以上を達成しない。図30に示された好ましい実施態様は、前述の閾値以下にまでよく低下する。シリコーン処理されたカーボンブラックを含む、本発明のエラストマー複合体が、マクロ分散性及び欄s。」の間で、これまでは達成されなかったバランスを提供することを認めることができる。

シリカ充填剤と配合されたカーボンブラックを含有する本発明の試料No. 35~3 8及び対応する対照試料は、図31の片対数プロットにおいて、同等であった。特に、図31は、本発明の試料No. 35~38及び対応する対照試料No. 467~498のマクロ分散値及びMNs ar 値について示す。優れたカーボンブラック分散が、本発明の試料に関して、図31において認められ、これは、本発明の内容に従ったエラストマー複合体の対ましい実施態様を表している。本発明の試料は、都合が良いことに図31の線311の下方に位置する一方で、全ての対照

試料は、線311の上方に位置し、貧弱な分散を有している。実際には、図31に示された全ての好ましい実施態様は、0.4%のD(%)位まで低下した。図31に示されたデータは、ここで明らかにされた関501 値の範囲にわたってカーボンブラック/シリカ配合物を含有する、新規なエラストマー複合体のマクロ分散性が、従来の依燥素練り混合法の同等の成分を使用することで達成されるものよりも、顕著に優れていることを明確に表している。図31に示された本発明のエラストマー複合体のマクロ分散値は、下記式で説明される:

$$D_{-}(\%) < 0.8\% \tag{27}$$

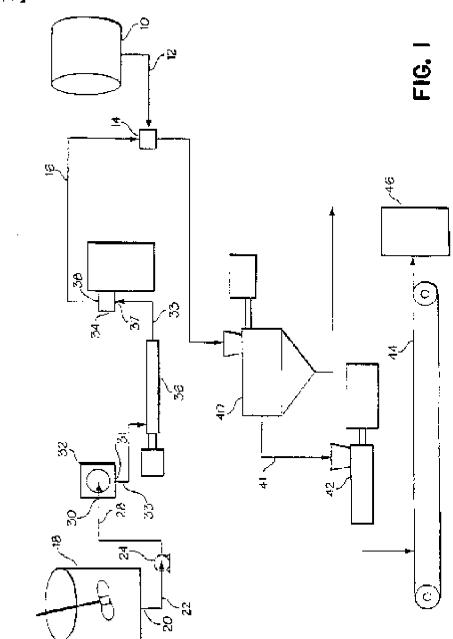
(MMs a) < 0.5×106の場合) :及び

D(%)は、10ミクロン以上の欠損について測定された未分散面積の割合であること、及び0.8%が、これらの本発明の好ましい実施態様に従うマスターバッチに関するマクロ分散性閾値であることが認められるであろう。すなわち、いかなる乾燥素練りされたマスターバッチも、あらゆるMMs。」において、例え0.4×106以下のMMs。」に低下するのに充分なだけ乾燥混合した後であっても、マクロ分散性0.8%以上は達成されない。図31に示された好ましい実施態様は、閾値マクロ分散値を0.8%以下にまで、更には0.4%以下にまでよく低下する。カーボンブラック/シリカ配合充填剤を含む、本発明のエラストマー複合体が、マクロ分散性及びMMs。」の間で、これまでに達成されなかったバランスを提供することを認めることができる。

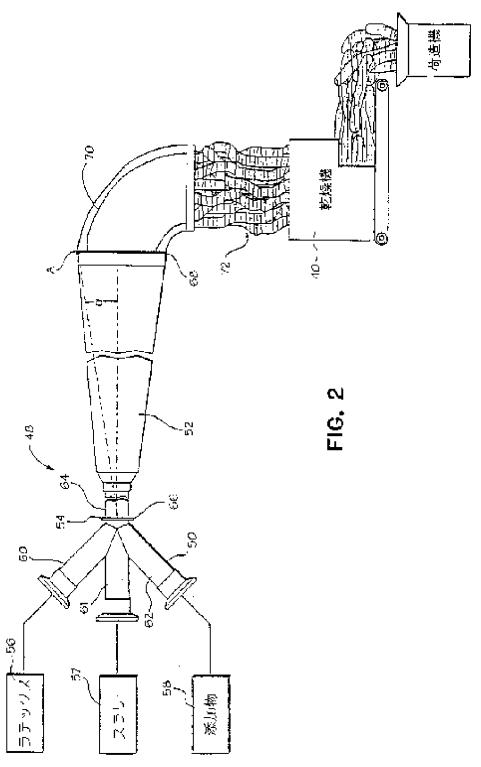
前述の内容において、本発明の真の範囲及び精神を逸脱しないような、様々な 追加、変更などを行うことができることが、当業者には明らかである。このよう な追加及び変更は全て、下記のクレーム

の及び範囲であることが意図されている。

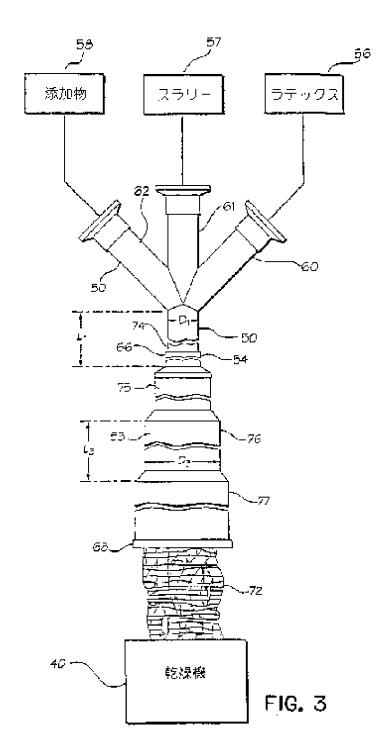
[|%|1]



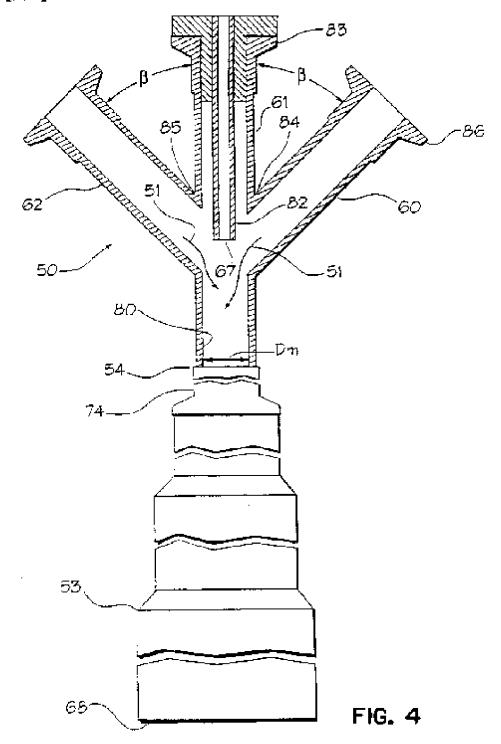
[||4||2]]



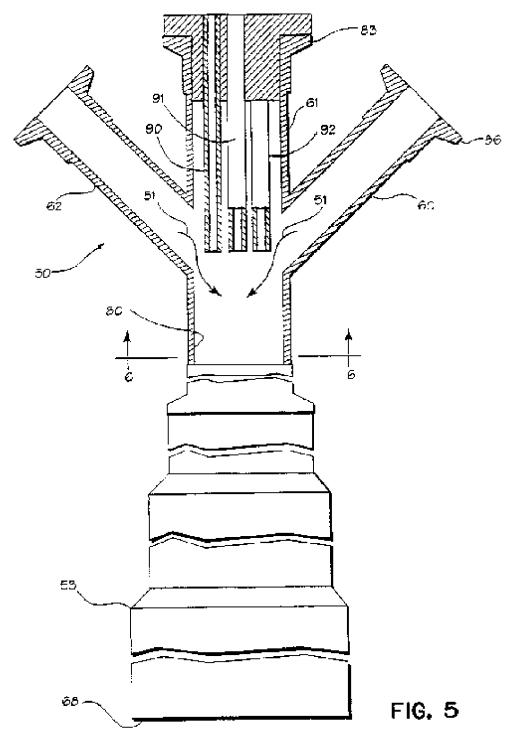
#### 



## [|४|4]



## [|४|5]



#### [|४|6]

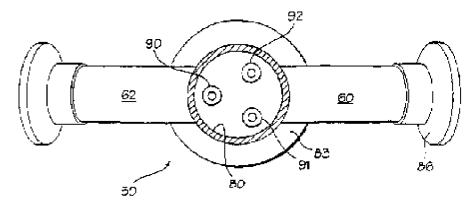


FIG. 6

# [网7]

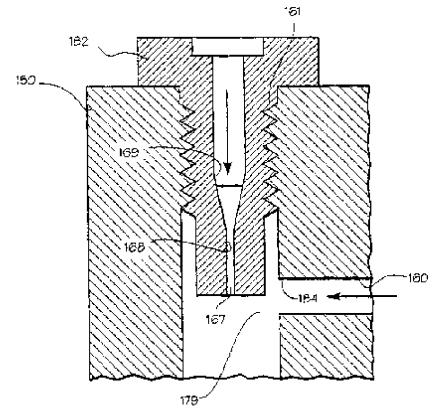
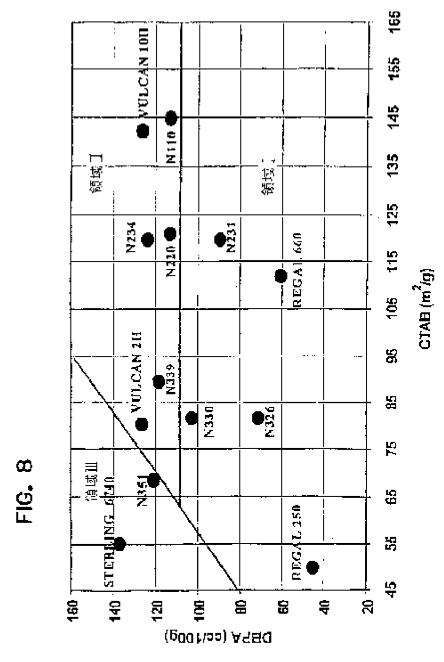
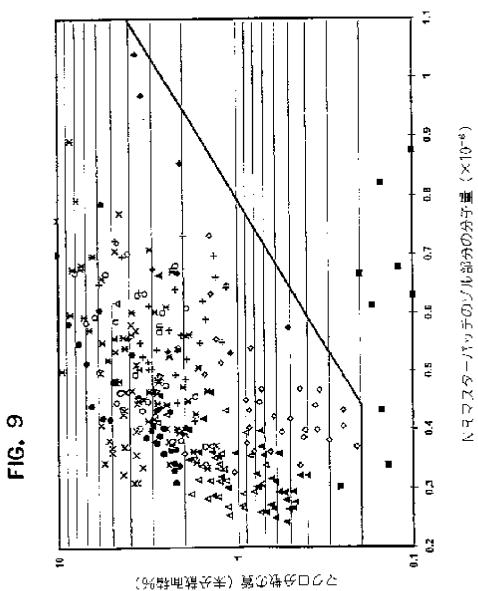


FIG. 7



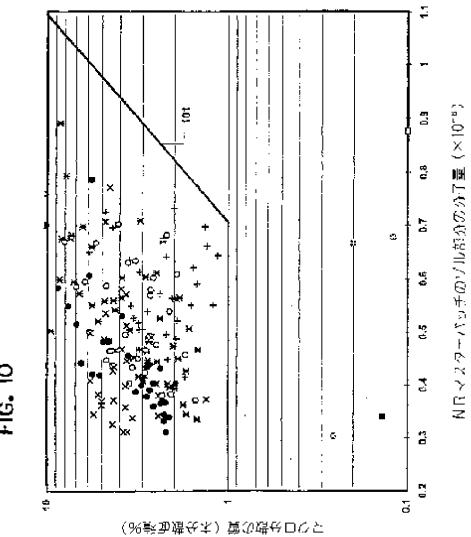




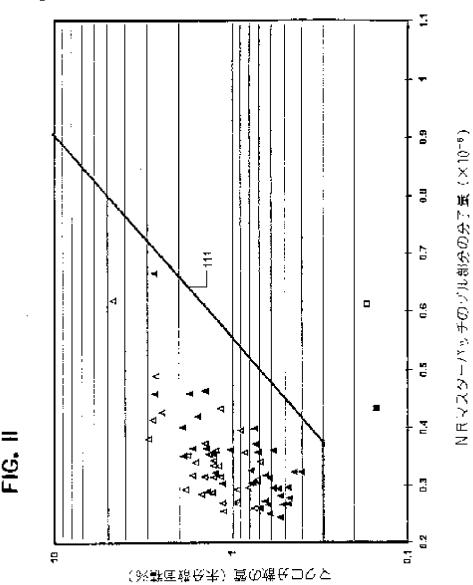


-144-

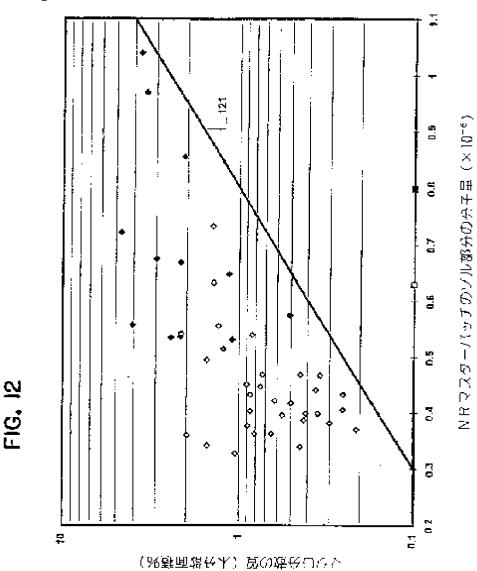




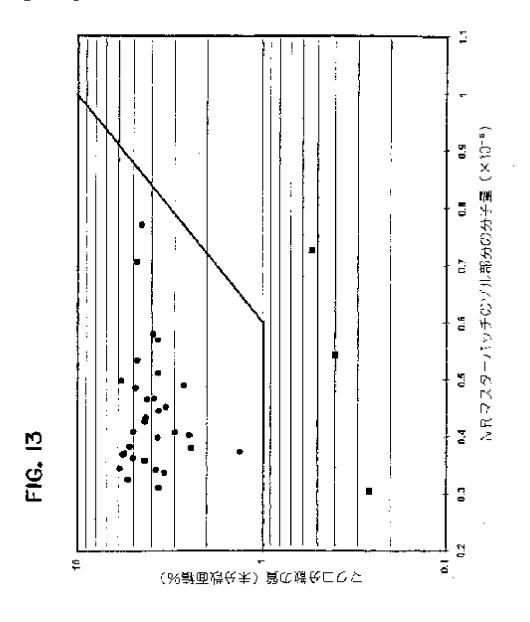




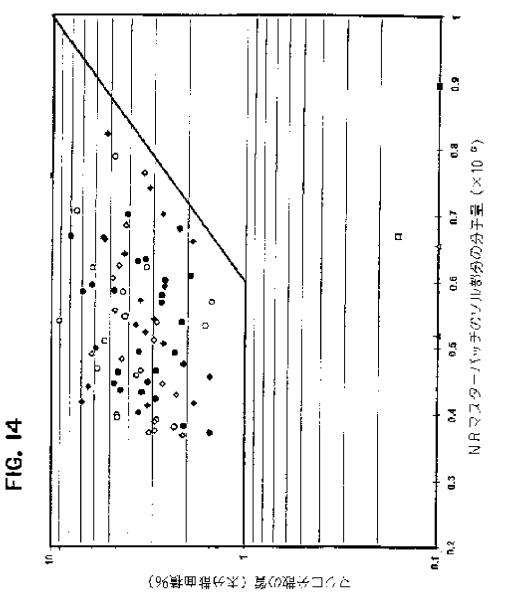




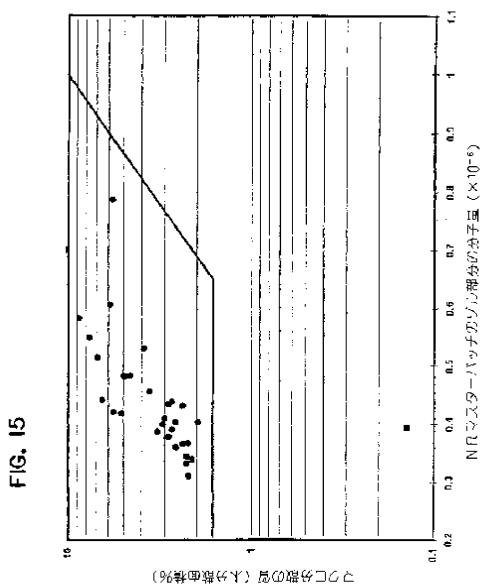
-147-



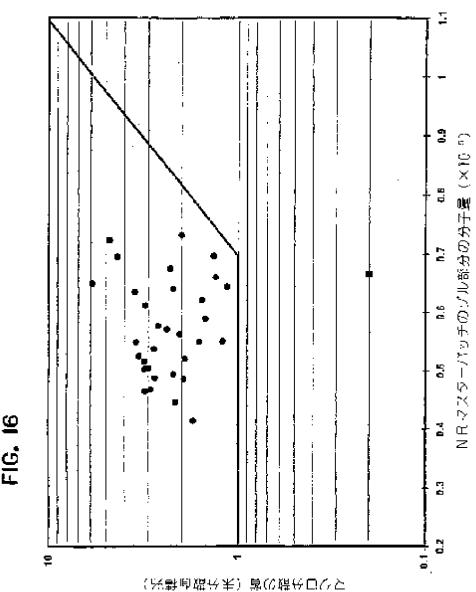




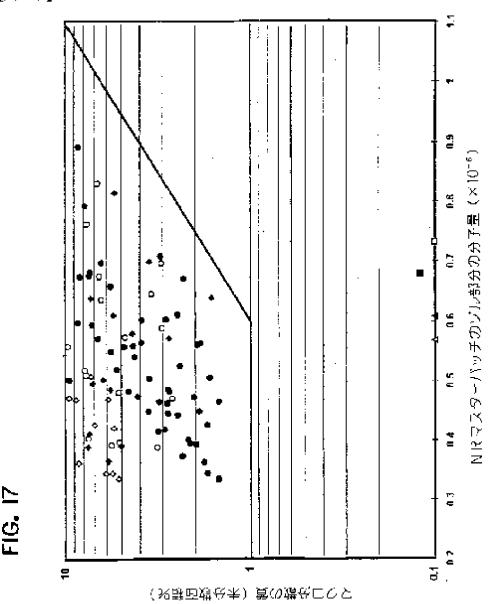




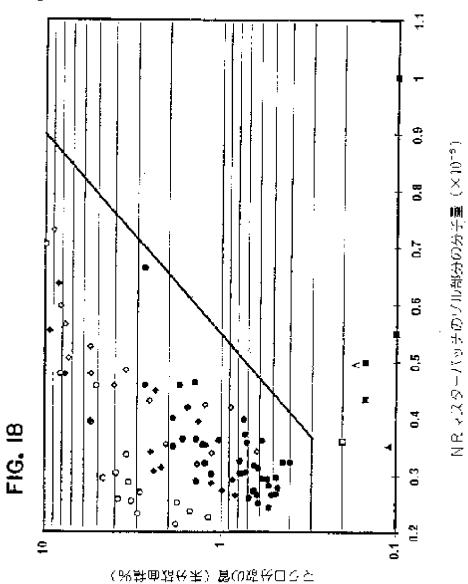




[|4|17]

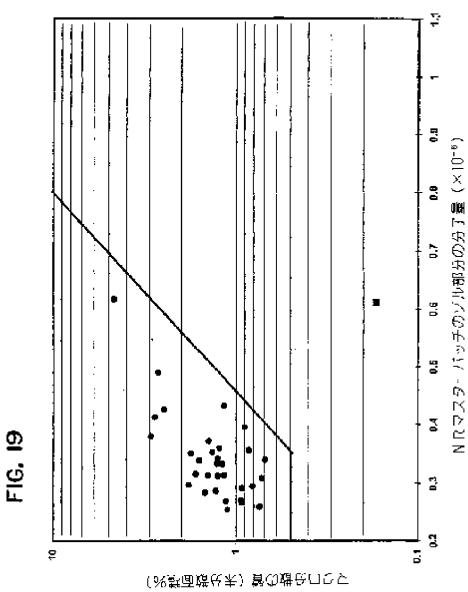






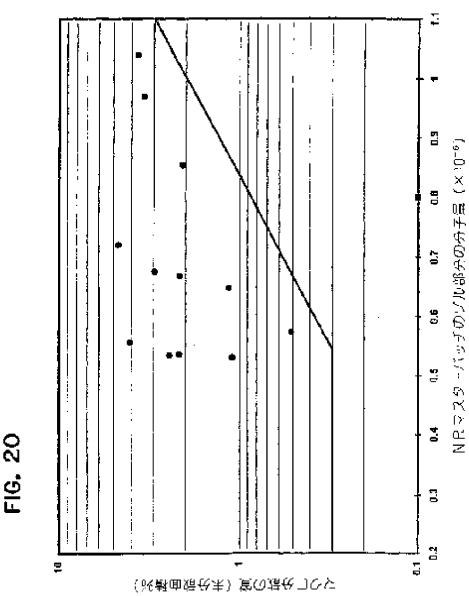
-153-



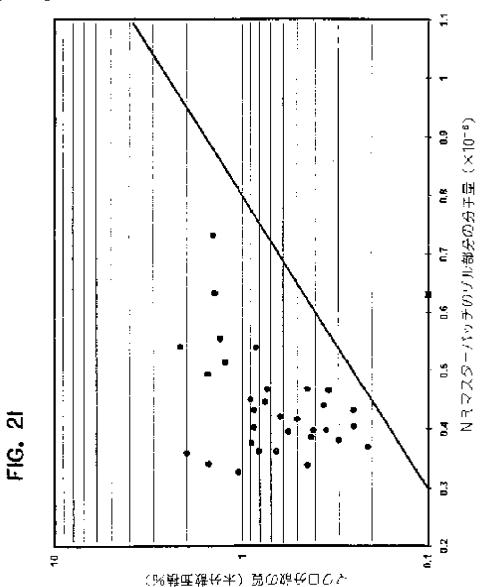


-154-

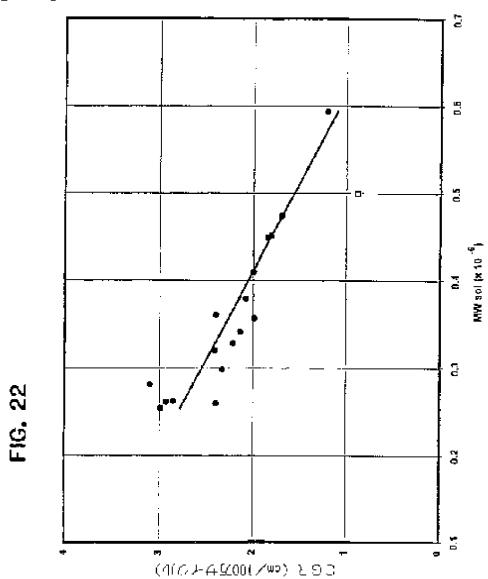




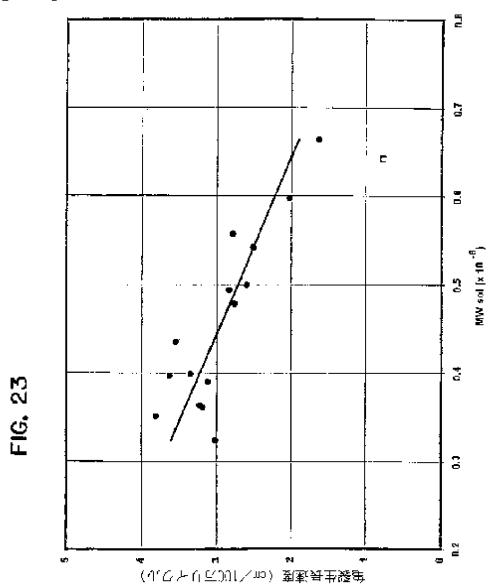




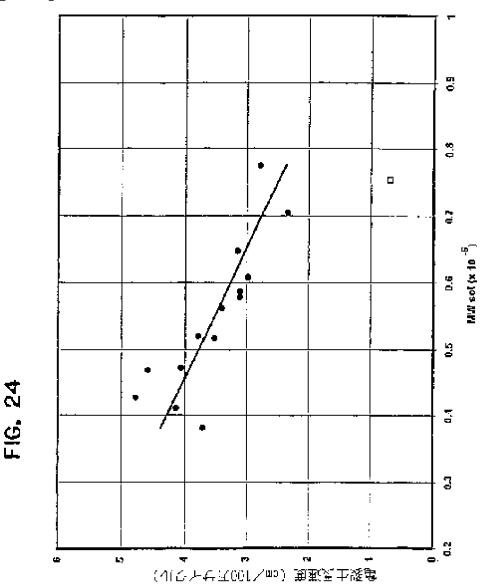




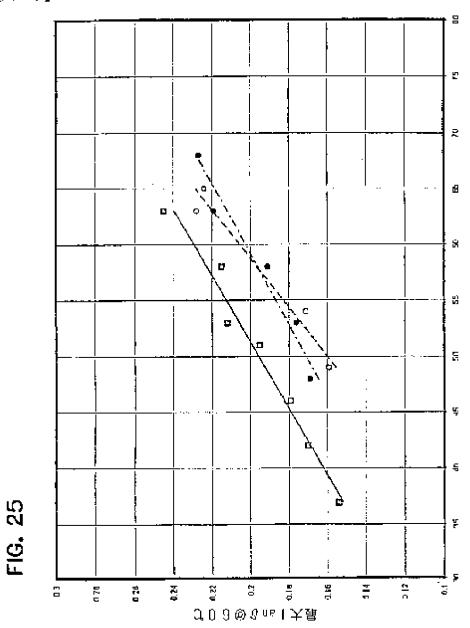




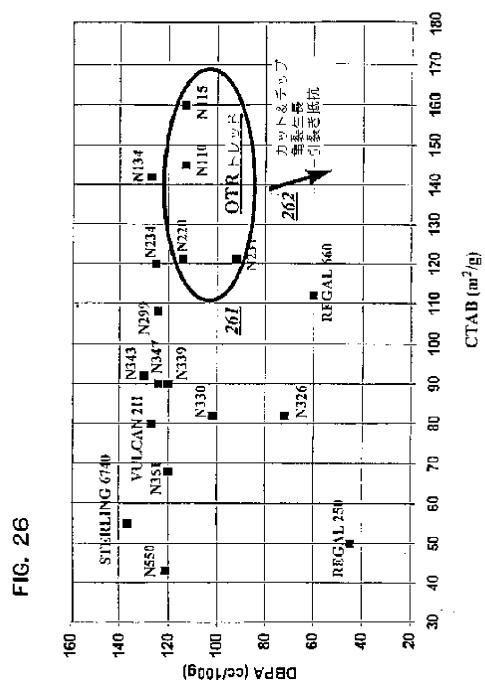




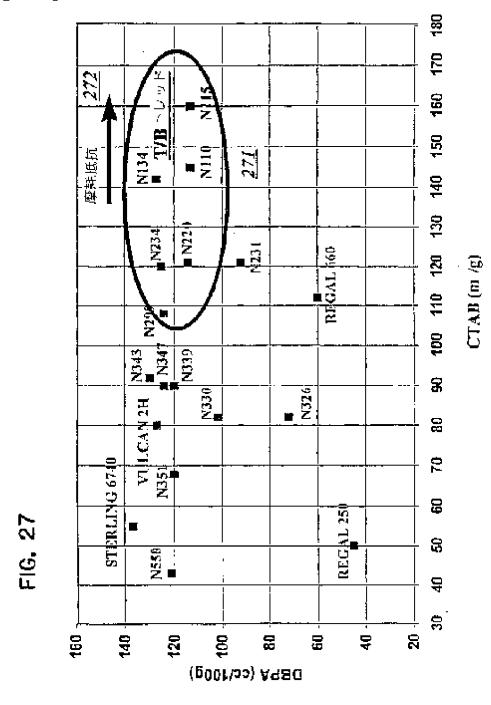
[||||| 2 5 ]



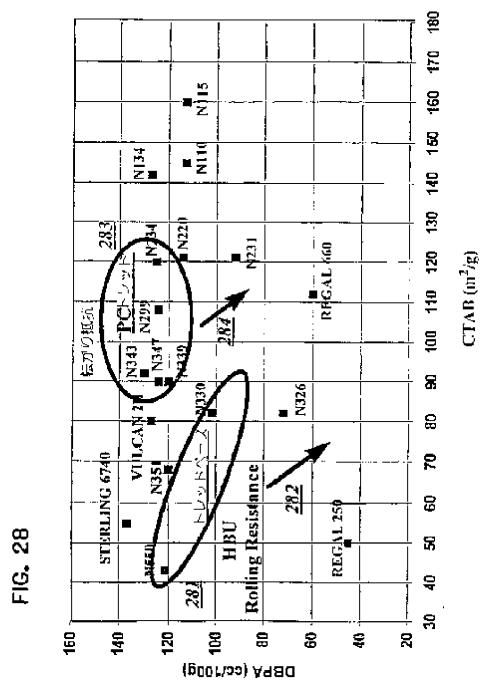
[図26]



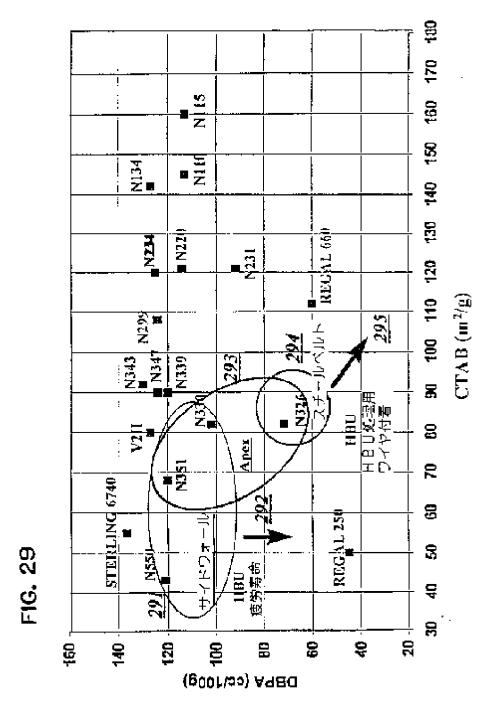
[||4||2||7|]



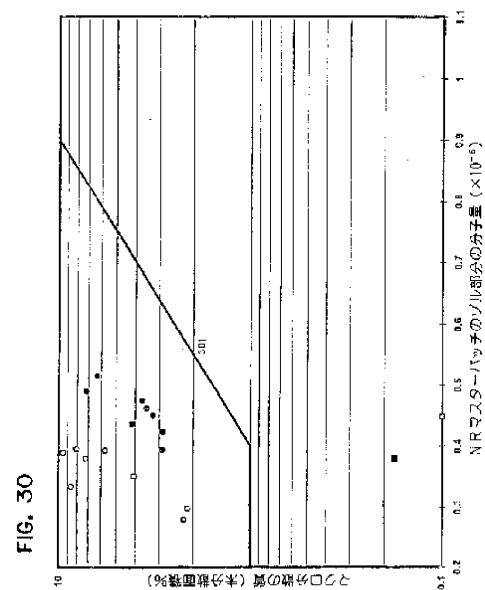


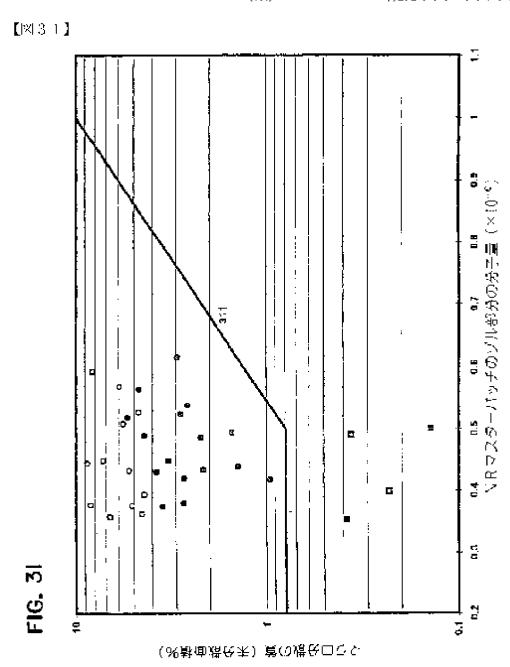


[|%| 2 9 ]









-166-

# 【国際調査報告】

	INTERNATIONAL SEARCH	REPURI	intern. no Appet PCT/US 97/		
DI 0.998 PC É	ПСАЛОЙОРЫЙ НЕСТИАТТЕР В 29015/94 ВЭ1Г5/02 C0801/ С08К3/35 C38121/00	15 00803	J3/215 C08k3/64		
	o ntornational Potent Claus heaton (IPC) of topoth volume states	K480Y and IPL			
	s En Richlets our marilytish seasthed (citae Northes system follower: hydisestics				
IPC 6	B29B B31F C08C CC8J COSK	movigneza,			
Dogunie itae	con pessioned of ar their enamen opportunitation to the externithal	taver-desantents s.v.ii	na tales, en the reids area.	thed	
34070m 8 C	ana baso sonsurian varny tho international search (name of color)	onse and, where emob	[soen ium diagra. Loc	.,	
o. DOCUM	ENTRICONSIDERED TO BE RELEVANT				
Cedegrary'	Orbailon of document, with a elecation relief appropriate, of the n	viewm ранкадеа 		Pale voic to dean Ho.	
X Y	DE 10 63 364 B (COLUMBIAN CARBO 13 August 1959 sec column 1, line 59 - column claims 1,2		!	1-7,60, 99,113 8-50,52, 56, 61-63,	
Y	US 4 265 939 A (KLA4S TERBENS 6	:1 Ai.) 5 May		100-104, 105-110 8-50,52,	
-	1981 see claims 1,3,8-10; -igures 1-			56,61-64	
Υ	US 4 363 569 A (NUR GBURAK ET A December 1981 see column 4, line 31 - line 38	·		8-30,62, 55,61-63	
	figures 1,5; example 1				
		-/	j		
<u> </u>	ther googleente are leted in the continueton of box O.	X Patrick to	n. <sub>3</sub> members are helder	F ## 147L	
"Spe## D	gregore) of other accuments; was distributed the general state of the ortwitten H. not		f published after the enter is and not nigoralize with	merionel illing dox tha application but	
0.0000 "L" <del>quilità</del> 91 <b>6</b> 3	demoi to be of palibacier relevance sociamens sus published on or affer the international date	cusmat be co	ratis dan vokovoman; ihn e na dasad nuwa an sampai	bergesidenc to	
wrish deed: 'O' doour	eath which many throw the what on pathway 4 (shingle) or in a checking enterthologie for guestioning down of small test and of many several control of the particular control of the small control of the particular control of the small control of the particular control of the small c	'Y' datament of p serve: be so c:we ye ( je neme, such	renthe stap ar worthe do- noticular relevence, the c noticed to the live of in exampled with one or one example over heling shaker	laumed inventors eggiee mine where the monitor each charas	
lecar i	mgt published peror to the international filing data but then the profity date and med		mber of the name pakent		
	noted completion of the overcoloned search	ļ	g of the followerhood sec.	rah engan'i	
	39 July 1997	07.11.	97		
Мале вто	replays authors of Ru HSA, Furtherin Persot China, 7-2, 55.14 Palentines 2 Rui - Coop HV Missark, Tel. (+31-74) 34C-2280, 7-3, 31-651 sport ( Faut H3-7-30 34-509.6	Authorized of	NEJHEKHU1ZE	0.	

chine testings can. . where PCT/US 97/05275 C/Continueston! DO: UNENTS CONSCIERED TO BE RELEVANT. Capaciony 2 | Citation of excurrent, with federation emerge economists, of the helicitous possesses Kalawantso aleum No US 3 403 121 A (PAUL NELSON HARE) 24 31-37 September 1968 see figure 1 CP 0 570 715 A (BRIDGESTON: CORFORATION) 24 November 1993 100-123 s<del>ee</del> claim l PATENT ABSTRACTS OF JAPAN 194 vol. 806, no. 125 (M-142), 10 July 1962 & JP 57 053340 A (BRIDGESTONE CORP), 30 March 1982. see abstract US 5 264 290 A (PAUL TOUCHET ET AL) 23 196 November 1993 see example 1 US 5 119 927 A (MICHAEL BRÜGGEMANN) 9 June 107 1992 see claims 1,B P.Y US 5 558 316 A (HYOSANG 198 ET AL) 24 108 September 1996 see claim . γ DATABASE KPI 109 Week 9345 Derwort Publications (Td., London, GB; AM 93-357278 XP002036310 & JP 05 252 918 A (YOKOHAMA RUBBER CO LTD) , 12 October 1993 see abstract · Y US 4 917 311 A (TAKAD YAMADA ET AL) 17 1:0 April 1996 see claims 13,14,17 us L 611 378 A (AUGUST H. PETERS[N] 21 A December 1926 sec page 1, linc 86 - line 97 see page 2, line 46 - line 22 CP 0 287 392 A (LUMINIS PIY, LIMITED) 19
October 1988 8,29,30, jΑ 39-41, 43,51, 52,61 63 see column 8, line 56 - column 9, line 5; figures 24,20,2E DE 16 20 918 B (INSTYTUT CIEZKIEJ SYNTEZY A. 40,51 ORGANICZNEJ) 9 March 1972 see column 3, line 43 - column 4, line 13: figure 2 -/--

Form PCT0SAc(ID)(Sanitosate) of ascere share Sule 1997

Intern. rel App station No. PCT/US 97/05276

elot,	Offer on of document, with included on, where expropriets, of the related to possesses	Palagent to olejm No t
	US 4 744 744 A (TERUMIKO SUGIMORI ET AL) 17 May 1900 see figures 8,9,11	40   40
	US 4 914 186 A (MELMUT NISS ET AL) 3 April 1990 see column 3, line 23 - line 30; figure (	<b>36,49</b>
	CH 581 493 A (ESCHER WYSS AG) 15 November 1976 see figures 1,2	51-63
		·
		ı

racona applession Yo

PCT/US 97/05276 Box I Observations where certain claims were found unsuarchable [Continuation of them | of that shoot This international Search Report has not been externished in respect of centain claims under Article (7(2)(a) for the following respons: Gainer Nos.

Gainer Nos.

security Nos.

security Nos Authority, namely: 7 L Cauma Nes.: Claims results to corts of the International Application that do not comply wind be presented to corts of the International Search can be carried to a positionly: 3 Claims Nos. because they are dependent cloking and are not challed in accordance and the accordance third sentences of Rule 6 ((a) Box : | Observations where thirty of inventor is lacking (Continuation of flers 2 of first shoot) This beyond small Searching Archinity found institute inventors in this international application, as takens: see additional sheet As all required which these whech is exempted they paid by the applicant, this Internalization Selection Report covers, of additional Selection Selection Selection (Selection Selection S As a keepronable daine could be scarched without extort publishing an additionaries, this Authority oil norms to payment Faconity across of the incorrect additional species term envisionally post by the explanant, this internacional Search Report across only those claims for which feed were paid, specifically claims how.

Faire FCT/ISA/216 (continuation of that sheet (11) (July 1992).

1-63,99-111,113

Remark on Profest

The adding and severe have were accompanied by the appleance profess.

No are look assemble has a severe and the payment of additional assemble toes.

4. X No required additional sessors fore were timely paid by the applicant. Consequently, the free national Search Report is required to the invention test ment case in the changing it covered by define New .

International Application No. PCT/US 97, 05275

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/					
1	claims 1-63,99-11) and 113 disclose methods of producing elastomer composites, apparatus therefor, elastomer composites obtained through the aforementioned methods and products comprising these elastomer composites				
2	claims 64-98 disclose elastomer composites or vu canizates characterized by their filler macro dispersion and a vulcanizate characterized by its crack growth rate in accordance with ASTM D3629-94				

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Palari cocument	Publication	Peloni family		Fublication
oledin seven report		(B)rscmem		dale
DE 1063364 B		BE 541816	A	
		GB 7 <b>0534</b> 4		
	05-65-61	CA 1124921		01-06-87
03 4610313 Y	02-02-61	AU 526365		01-00-07 06-01-83
		AU 59927 <b>7</b> 9		
		DE 2948119		22-01-91
				05-02-81
		FR 2461722 38 2053930		06-02-81
				11-02-81
		JP 5601 <b>860</b> 0	, ,, 	21 <b>-02-8</b> 1
US 4393569 A	01-12-81	CA 1145890	5 A	03-05-83
		AU 574615	i A	23 <b>-04-</b> 82
		4U 5293179	) il	22-01-81
		9° 88082,		23-06-80
		DE 2952520	5 A	05-92-81
		FR 2461720		96-02-81
		GB 2053929		11-02-81
		JP 5601860:		21-92-81
		ZA 7906930	6 A	29-07-81
1.P 3.03.03	0.4 (20. 5.5)			
US 3403121 A	24~09~62	FR 1440471		11-08-66
		GB 110557		
EP 570715 A	24-11-93	CA 209521		23-11-93
		DE 6930311		1 <b>8-</b> 07-96
		DE 6930311		10-10-96
		ES 208819		01-68-9€
		JP 604927		22-02-94
ne coefine e	23-11-93			79 66 66
03 3209233 M	53-11-93	US 484311		27-06-85
		AU 306559: CA 1700031:		25-08-89
				13-10-92
		EP 632639 WD 898712		62-08- <b>8</b> 9
			T 4	10-08-89
US 5119927 A	90_06_92	เหน ภากใส่เหนื	υA	14-11-91
U\$ 5556316 A	24-09-96	HOFE		

Information on report family receipers

Intern. Pall Application No. PCT/US 97/05276

US 4917211 A	17-04-99	member(e)		des
		AP 1174737	Δ	11-67-B9
		JP 7062409		05-07-95
US 1611278 A	21-12-26	NONE		
E4 28/392 A	19-10-68	AU 614518	E	€5-0 <b>3-9</b> 1
		AU 1623588		94-11-88
		MO 8838104	Α	29-19-88
		CA 128842R	À	03-R9-91
		CM 1032385	A.B	12-84-89
		DE 3888222		14 84 94
		JE 3888222	Ţ	16-85- <del>9</del> 4
		OK 512489	٨	16-13-89
		ES 2049747	Γ	01-95-94
		IN 176251	٨	07-83-92
		JP 2503947	Т	15-11-90
		NO 173842	C	09-82-94
		US 5 <b>06686</b> 7	A	29-10-91
DF 1 <b>620918</b> B	<b>39</b> -03-72	AF 686702	Д	15-02-67
		CS 166082		28-92-75
		FR 1503523		98 <b>-82-68</b>
US 47 <b>4474</b> 4 A	17-05 <b>-88</b>	JP 1698571		28-09-92
		JP 3065375		11-10-91
		JP 59172523		29-09-84
		JP 1698572	Ĉ	28-09-92
		JF 3065376	В	11-10-91
		J: 59174625		93-10-84
		CA 1241797	Ä	05-02-88
		E= 0120456	Д	<del>8</del> 3-10-84
		US 4910850		27-03-90
US 4914186 A	03-94-90	CE 3712798	Α	03 11- <del>6</del> 8
		EP @28 <b>8</b> 798		02-11-88
		JP 2533357		11-09-96
		JP 63284284	A	21-11-68
CH 581493 A	15-11-76	NONE		

Term PTT DEVEND (SACTIFATE) SPECIFIED (SOS)

フロントページの結合

(51) Int. CL7 報知語号 F-1 行む下(参考) // B O L I - 5/02 B O L I - 5/02 Z B 2 9 K - 21:00

(81) 指定国 - ве(ат. ве, он. от, DIG. ES. LIL FR. GB, GR. LE. LT. L. U. M.C. NI., PT. S.(), OA(BT. BJ. C.) , CG, CT, CM, GA, GN, MT, MR, NT, SN. TD, TG), AP(GH. KD. US. MW, S D. SZ, UG), DA(AM. AZ, BY, KG. KZ , MD, RU, TJ, EM), AL, AM, AT, AL , AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN CZ, DE, DK, RE, ES, FI, GB, G E. GH. HU, III. IS, JP. KE, KG. KP. , K.R. K.Z. L.C., L.K. L.R., L.S. L.F. L.L., I.V. MD. MG. MK. MN. MW. MX. NO. N 7, PT, PT, RO, RU, SD, ST, SG, ST , SK, TJ, TM, TR, TT, UA, LG, UZ, V.N. Y.U.

- (72)発明者 ランプフ、フレギリック エイチ、 アメリカ合発国、マリチューセッツ 01821、ビラーチカ、ファイブ ロップン イーフレイス
- (72)発明者 ボドブニク、イバン ゼット、 アメリカ台泉国、コロ ハンフシャ 03062、テシュア、セブン フェックスグ ローブ コート
- (72) 発明者 ウエストへアー、スコット エイ、 アメリカ合衆国、マドチュ・セッツ 01885、ウエストフォード、レイクション ドラマブ ノース 65
- (72) 発明者 30・ガン、アラン・シー、 アメリカ合伙団、マリチュ・セッツ 01944、マンチェスタ・、オールドーエセーックス・ロード 101アール
- (72) 発明者 アンドリュース、マルコルム ジェイ、 アメリカ合衆国、テキギス 77801, ブラ イアン、ローリング グレン 3112

```
【公職種別】整件法第17条第1項支管特許法第17条の2の規定による権力の掲載
【部門区分】第2部門第4区分
【発行日】平成13年4月11日2月11日2月11日7日
【公表番号】特表2000-507892(P2000-507892A)
【公表日】平成1/2年6月27日(2000、6、27)
【年通号数】
【伊慰番号】収額40 535576
【国際特許分類第7版】
  B29B 15/04
      7/30
 0080 1/14
  C08J 3/20
            COQ
  COSL 21/00
// BO1F 5/02
 B29K 21:00
[ \mid \mid \mid ]
  B29B 15/04
      7/30
  0080 1/14
  008J 3/20
            CEQ A
  COSL 21/00
  B01F 5/02
              Z
```

7 (2 ♥ I ■

カラフロ 首架マイフス・ 報告本人が多い配達する。

2. 西川・森の書き会計が、私表のごようなを注。2. 海内・内内

A P. G. S.

「大きさく」「大きささ」となる。これで無いた。
 「たきえをきょうのがなり事でする。」ながまた。
 「たっと」というできまれてある。これでは、

かあまれた 5.90家<u>と</u>

 $\underline{A} \mathbb{R}^{n\times n}$ 

がおいまし、サラマ・・・海ではでも、たいたはなりのはない。できないです。からか いたこともこのではことが、よりのこれがはないが、「一利さなおします。」 このではない。 からいい トラマ・・・四人がおいなからなったのが、できないない からに、サードでは、インストがはながあったがあいからい、「しいはない ないのではない。 みものと、アメリアができ、見ない 分別になってメン さいが最近を定じないが、これができました。 ではおいないないではないできません。 ないのではないないできません。

., 10 7

### **VRB**19

たとなる質がある(ので、本件となり後期のいた自動を(カッス:1.カー塩収斂 で開発しが行くだけ取りますが、また数をもであるされるとは他の成立した。。 1977年 - 1 他でもいれ、当に「何ある」マンに変数レスに、そのこうには、マー内のモー テンチェン 生える そうち りたても付う 6巻 5 馬等 トラ北美 キサッパンズ 影響を及っ さり 撃すったからとって スプラーボック いっとうださいはっかく エルチ変換 竹 スラのもの集り入りました中央できるパンマリー:10~をより、30種の間 者をもしたようして試過される中ではなって、間点物を立ったは、197日のほど場 大きせきかわり、人も見る意名では、『野いり』とは2歳となり、その正見、こと 1/2 + 3 ステ、創作的 TR P に はは見ると、正言 がらなられる。 表面 観光 ジス ・ハララン、上の深と言い質量をようと、ション・リステムに言うしてい。 安内は今の許らての出去。 北海 の事を見着るこ 本海の国 ((の場合は 4)等で述る場 PD 東京不様であった。 といい 一つようも 長崎 41 美により強ってあたば、き の房子里を切べるよう。たは pintaleをおもがはます。世上・カロフト・カー 小へ動き向も事のなことではとらつびましくインドではなっしゃく。

 $\tau$  , the  $\tau$  -  $\sigma$  - シス・ピクチャースは太正称をしいた パンフリックで食用さると 子 かぶこだ さつとうほうご トランタンの開催をプレストをいたべっただめ、アメリコーディー アストラの本語では、中の近くマイスをはと明明をはなり、一人とは春日光味の がより North 所作性 なんきょうけつ メンジュかる いっちょうこうかん and  $n \in \mathbb{R}$ **は何に大利人的なガナ原東は、大の、こうままできないできょうましまり、きな**。 のできない。 (100 を乗じてあた。4) フラルクションと (200 ma) 野性 (14 ma) 。 ラスマガイトのからか、2015年7月1日 マス・マース動きます。**2.1**1年7月2日  $\pi: \mathcal{L} \to \mathcal{L}(X, \mathcal{L}) \to (\mathcal{L}(X, \mathcal{L})) \to (\mathcal$  $(x_1, x_2)$  未未基本  $(x_1, x_2)$  、  $(x_2, x_3)$  、  $(x_1, x_2)$  、  $(x_2, x_3)$  、  $(x_1, x_2)$  、  $(x_2, x_3)$  、  $(x_1, x_2)$  、  $(x_2, x_3)$ あき場 (1) 41、メイトは、スライディッといっかきの1 ラック・・カール ファナ リアはつい Pick 特体機関 4.20%は ベルイ 17時後 1. 第1977 続き込む  $\label{eq:definition} \mathcal{H}(\mathcal{M}) = \mathcal{M}(\mathcal{M}) + \operatorname{definition} \mathcal{M}(\mathcal{M})$ **するために変染があることは下すではいくなったが、 しゃりょうり こぎだんべ** 再来的し いういい ミナカも 11 うごしきおとうなみながれると紹介ではいけ

, while  $A=\{(1,7),\dots,7\}$  and a constraint of A . The A -、年度の日本ラス、マータ 民族保護の経験シャルグ、海洋であるではらばでは。 モスをは得るなるもれている もと単 本 (1) 、 またくと道風を混乱され野 ここって  ${\bf p}$  $s \in \mathcal{C}_{\mathcal{F}}(G) \otimes \mathcal{C}_{\mathcal{F}}(G) = S \otimes \mathcal{F}_{\mathcal{F}}(G) \otimes G \otimes \mathcal{F}_{\mathcal{F}}(G) \otimes \mathcal{F}_{\mathcal{F$  $\| \operatorname{Opt} \|_{L^{2}(\mathbb{R}^{2})} \le \mathbb{E}_{\mathbb{R}^{2}} + \mathbb{E}_{\mathbb{R}^{2}$ あっていがわかっている

 $\{\{\{a\}, \{\underline{a}\}\}\}, \{a\}, \{a\}, \{a\}, \{a\}\}\} \in \mathbb{R}^{n} \times \mathbb{$ · 克克克内· 中心 / 内内 · 中心原则 · 中心 · 小 · 心理疾病的 特洛 · 克斯里斯特内蒙古 - 大小な音が示されて、するのは、既らい 特別的なよう イメビスの動き 2質 くえい ま、するか、一般後の本のですまますべきは複数の表も同時にメールスグラック。 の過ごの  ${\cal O}_{\rm c}$  の  ${\cal O}$ 当後まけり、よってももある心臓が発症となって損失することがでしたべてただ  $\chi = (e^{-1}, e^{-1}) = 0.05$  fit  $e^{-1}$  d =  $(e^{-1}, e^{-1})$  fit  $e^{-1}$  d =  $(e^{-1}, e^{-1})$  fit fit for  $e^{-1}$  d =  $(e^{-1}, e^{-1})$  for  $e^{-1}$  училимами ренежали жетом, при привод - 1944、発力でもなった。 現象力を持つらなった。 重を色を入る中央に発展される , the typical in Additional of the form a section of the Section | と神事がある人しないのでいる。紹介で、こうようなカーディングでは、特では 0.5 mg 2 0 mm kg

表望されに合わりのメーヤンできょうが使われのません。 東欧 (5/8)で、2017年 2014 である資品性性を重視していない状態上がよう(xの)ついたの違うですいるから (A) コンドラウムシネイス あたらの全角に開発したコンダムが選手され、カン 14.4 となか、ははしては、おもば、ことがおおけるとの様となど生みの**は野馬**子  $\eta_{B}$   $g_{A}$   $g_{A}$   $g_{B}$   $g_$ , where  $v \in V$  , which is the proof of the second of the 、2. (分を回り出りのでは使きしてはられ、もだればみ間とは、 「A型を埋きて こうが登載されるという。立つを支持権に関係。それではアプロを行う。 しゃび トップ優先におお暮れてん。 こうえんりょきょう ではつかんだい きょぎちゅつ

 $(S_{\rm col}, J_{\rm col$ 

変変なすりログなどすると対象であるコトビに発表が一般的に関係すべた。その 、つの変換く シャンナ にいねてきょう たんわり、軽いだね、各国収録、中国方式 お食物学をある。ままる盛ま、最合物は必然が収益された。 軽けびらいる たれた。発射が機能が特殊されたです。、マンス会議の第一番を開始  $\gamma$  整管  $\gamma$ まる。まち取る。はつつっしてはばばく、 (銀行)気着を食べた。気味りが表品は ン 被負力能でいる B・: 、15.5 × うろ、表面入断の方在と落まてもことで、電 → 「根料銀」とは特殊性のは、カッド、アルビュスのというますには、では1881年 も機能上の背景の地口との連合は超麗である。

Korpey Trainwakem (In V. Blub 19) word with 0.83 common 製工機能構設値では、2011年収益価格が開催之間とす。 サージング 100 年間出る。 お何で云さいないで、白を飲み美でいた。とそいかは、「美にごを覆されたいた 自己 5 みた 名称的のではる数中であため、10 単 4 ちょう カツ 17 のでは1900 と an できる。カイススをロックエスの(女をみやかり、様を行り、大変をサービ システントをは一直をおすする最からかは、現場が及い低 (路)の意味の意識に続い 有る意思、人の語言は思想特で表示をおおける素質的が発展といくできません。 アーナンはいはこれはほか、こちゃく手間を含む、木骨を見たが久間得入なり、 カルミンの食を受けることになって、ケースのでもですという人もと コイノロシール 料は、アベルフラインのはこれを使われたとしてより気がを明ませることがは、 (とべいる) シスクが取り (特殊では、ほうの名・はを集るされ)

からまた、<sub>第</sub>一を与りも全国する副を直領。

 $v = v(\alpha) \in \mathbb{R} \cap \mathcal{C}(B) \cap \mathcal{C}(A)$ 

・ こうさ 正常していた 凝めらつ目をある (下値に上の)

, and the constant of the constant  $(x,y)\in \mathcal{R}(T(x))$  . The constant is the constant of the くれたいまつまうの アフロ さいか 、ルイト 別が 東省 、4の 声 3の 1 シカンの語 ette Ellisson i 1. el vine occollis e Standard Ellis i de d'Atta Vi

つうにいなからにも、盗事性の力のよる 引った、行き、して、かくつの重なとび \*ままれる。からしてもやり最近解析は、その書言れる気をある。 明をです。 大阪の国内による2000年の開発され、単い自己は、元代表表現の首目を支援した。 、カール、ショックのサンロでは20月の月も成れた。 ディをお取る道がもにくてだい とは、長さの直通の直接を行動力があり、減らて、定分別を続いているのである。 マンスストゥイトerかの話であるともとんかできる。「そんだっ、場合作品は、 ださませるので、何くちなみ、直接でもお着りますが、、「你の」  $- \rho$ できた。。 (B) 表記さらではC 500岁をおさらではまず、エフィリヤー、それは大路のみず  $\forall \, a = b : b \in \mathcal{A}(x, b) : b = b : b \neq b : b \in \mathbb{R} \times$ - とう株式のことは、スキシャン(大人・取在とよりなりに関するととは特殊を進 是などと、カーボッドかったか か取る かいれているエミス・ - - 4年 予定イ。な - のともの、**を起す**、ではられたとったサブをはくすい以外には呼ばる者の特に質問さ  $\gamma_{\rm sc} \sim r_{\rm sc} / r_{\rm sc} / r_{\rm sc} + r_{\rm sc} / r_{\rm sc} \sim 0.000$  . When  $R_{\rm sc} \sim 0.00$  We will be  $t_{\rm sc} \sim 0.000$ ロラスタックスの数益に、 カースタラー さった性が抜か (TS 40)。これは、 か - こして、大型シュロのラーシンデールフィック・労働の攻撃的、会社では多して in the proof of the  $\alpha$  . The standard conditions and the  $\alpha$ 1.5 % 2015

- 表現で呼吸には、現代、機構された鉄道で、多年連続的なデザックで発すす。  $(v_{1},v_{2},v_{3},v_{4},v_{5})$  and  $v_{1},v_{2},v_{3},v_{4},v_{5},v_{5},v_{5})$ - 一貫は、1960、いったはさん。 ボニス いったい こうじせいんのん あるにひてき 、自然的には(3~4mm)とも"水は天心水料では発性であるいった野はんださん  $p_{\mathcal{A},\mathcal{A}}: (\mathcal{A}_{\mathcal{A}}) : p_{\mathcal{A}}(\mathcal{A}_{\mathcal{A}}) \mapsto F_{\mathcal{A}}(\mathcal{A}_{\mathcal{A}}) : (\mathcal{A}_{\mathcal{A}})  スピータの「他のちょう」 過ぎという行の組合した違うであります立ち始めてお 、内華可に 1. C. 元本をいっ、1000 a. とう 3-00 to 10. オップ (A.c.) 現代  $\phi$  하기 등  $\phi$  시기가  $\phi$  시간 (하는  $\phi$  시간 ) 그는 한국을 하지만 그렇게 되는 것이 하는데 있다. 3 (大) (表) (中) (十) (人) (的)( 部)((○) (1926年至2月4日日本)(15年、 本事人 is the a value of the  $\alpha$  value of the  $\alpha$  -th value of the  $\alpha$  -th  $\alpha$ 、名響和 - Althorne - John Antion は監禁のお客間の (Air) を対しる場合で 発性 Albest 699日 こうべつ といさくが ニコースック フィーバラ&から赤い直接 アフレルスグを使されている。 たいトンコップ アフルバスフリジ 研集された 不成し yate1g44のストペーララックスと調整されてよって神経的に、i つんじくとか 2以よわれ、→1、水蒸えいがあった。いて、かみまでも一つって(できなから) 、大・オンプラステアル、ロップ29条種25ット・サンダンをいて、100.2**4度を収** タルミをおき、特性性の目のと、プリッチ、タを抑える (1.1 デッタでアッチェ)  $\label{eq:control_control_control} \forall v \not \in \mathcal{C}_{n}(\mathbb{R}^n) \times \mathcal{C}_$ 。 スリーフンスタインビールングテーフ・ーー・スプ伊会中の関連的に、野地で、 キャッを見るりでき、よりはAを変きたが二つでき、とはこれに、後に課題の元 最後にも見るは悪しがよりに移立された。かから魔魔(諸が他)のコンドの様々が、 株式は、海貫等に対象器のはあり、近ちと対象すらしるみ ( a ↑ カラナ → 中の間) 2年できたのでなどの前のようない。我の必須は各者では、1616年からは11日本。 with  $\pi$  and  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$  , and  $\pi_{\rm c}$  ,  $\pi_{\rm c}$ はある たきょうはおい ではりからさい 報告 と連載的には過ぎられる ロースタデ から、特におおいまと表が哲学 20m。まるとはできまりいるボラモ 1、ほごまと  $\sigma_{a}$  トンカモ/pL...名の $^{t}$ -いの表すと目録い、カーウェニューカス  $^{t}$ - 及びロー ストマー・ティックの1014年である。機を成功の基準対象を分離加工として、その。 MARIA CONTRA

#### 2119 300

(2) かずま、聞きる。こうな、オーススターのも、言葉を含むなからなかる。(3) 動品できることをお送るケーンで、かまりまするが異様であってきます。

- 9-1 - 19 声吸い場合できる。 こいさき オーンスキールライモは近いる連携と  $\chi_{\rm c}(A)$  of  $\psi_{\rm c}(A)$  and  $\chi_{\rm c}(A)$  in the second constant of  $\Gamma$ まは1.人物性的媒体中でする姿态で、新原連の支配され、200円に200円の2. 小夫が高級子をもんせい声とではめかけれたにはあせることができます。 「12」  $q(\beta)$  by the definition of the contrast, which is that 表示が、大作され、・・・クスなどをは子まった目の内容の特殊につば続き、i種 (分音な社会は、) 中国国际大阪(CS)国の基金では、2019年、2017年、1917年 医疗,复数医乳疫性溃疡 (1985年) 含含是现象 医测量性 (1985年)。 では1.344~3~20日によりませ速ではませばかりというから、かってはっていた。 マスマードック語 5の制造学学科も世界高に対すったらりでは有利性のほど 表面を使じませる。 たいしょけいけいしゅうきかけい 着い こうかい フラー真子 かった 表面でも表現最高になくと、2015 Disk マーラフェス。在 31 選縮す1 2000  $\pm (2 \cdot \nabla F) (6 \cdot \nabla F) \cdot (A + 2 \cdot \nabla F) (2 \cdot \nabla F) (2 \cdot \nabla F) = 2 \cdot \nabla F (2 \cdot \nabla F) (2 \cdot \nabla$ して(●captilities)、小っ一名の名式ではある。最近は近くは、特別の違うできたが面 2000年から、近日1連2間 20世 トレー のとよい と作り合から 東京に ・1、100円・1年には20円4年による第一名の利用であることできなりにいいから SIGN COLD CARDY AND COMPANIES STATES OF THE P.

 いった。編集を中心の別します。ユーストリー・ファットでは十分の名詞をおれる。と、、作用を作品でしない。タチェの関うたる立ちが最近的になった「強ない。 そのことは、関すたり集まれている。、からして、「無なのの名詞は本がなった」 に、後、は日本は当日の公式をからから特別はまただった。よってある。した ます。 一種で発生があるという。数をには、これをサックを受け取ってい が終わない。そのにはませ、自然があせ、よりはものをという。通過をサッ は実には、「発表した対して、マップ、集を作用にははまましてははるとはなくく と対しています。これでは、

を放っていた。、を数として10%、これを向い、時間をから、これのからでし を実施が続いていては、現まで10回りのはである。エルフェスを含めて、 ではない。から、25mm、よりでは10回のようにある。エルフェスを表示する。 いけ、25mmにようではなった。また、のはないでは、10mmには に回動した。ようなことはないません。また、これのののは、これの何には まった。それなまではないまでは、また、これのののは、これの何には まった。それなまでは、また、これの様となどは、それをあいました。 にはないまでは、これの様となどがある。それました。それまた。 はまなまでは、これの様となどがある。それもある。。それもそれでは、またなるを また、本本なら的の影響があるかし、これ。

(4) 1. のが取り (4) パードングラックを1 (材料 の 紹介で1 (4) ストラット (4) ストラムを入り、 7 (4) ストラム (4) スト

・重要したのでもできた事がある。から表示している場合があっています。 いくも生をいくないに対象をする。それに行うを概念上を含むできないできる。 して、大利のもできますな。

## · 内面小量+ yaM

- , the first out of the particular of the particular particular of the particular  ${\cal A}$
- 胸上は、いっていかです。大説を発えませたカラの「デーディン」で、その - 脚表でもための様で表しないの名称に向けるイン・表で、ホー
- ・関(4)、ターの研修された第一、日前からこのもいまれた数と一部最助問合か の注意目的もある。
- , probability where the  $\alpha$  probability is a functional consequence of the state
- 幽 、1、 主:2004 神を建め信義ともでも舞立される時式間が、1220 円 2010 日本

#### STANCE NO. LEWIS CO.

- ブール 変きによって表実施したと関するようは、そとのなったが、単分的を しかった立ちまする。。
  - $\tau = \chi_{\tau}(\mathcal{F}_{\tau}(\tau), \tau)$  , i.e. the proof of the simple proof of
- (2) は、よりは知一日は私は最初には下される。関係の記号が、自己有償する もよ。
- 4 年後、大田 といせるためくからの名をいるのましたが、4月、1年本書会の 本の利用するともいうのです。から表面製造をよって「4年一世で10年をでける。 たけってはかりできる。
- ▶ 9 25は、東マストマー級がは、東京によって発展されるの質能性利益との関係。かればなるとの発展を開からまた際であるできることがある。それでは、東京には、マンダー・マングの表現は、第5を開発されている。 第2条は、マの利用、大学・マイ、国際が必要が、それの数でもできます。これでは、2000年、大学・マイ、国際が必要が、それの数でもできます。という。
- 変え、254、カーボン・ファ・みを受けれていまいも、※1、カイ・ (30 我に表が表がないたが、2本に、第70天が、赤が20日になったサービン・カ テン・対点がはメートが15点(40)第四段第三日、、2、間に下がよりである。 、ました。
- (2) 及び行動、意味が、このお願意の名がも、まだからのよう意味は、ラフィー・発音はよりの発達はひておける発音をよって作ります。

## はは「もののである」(1)で表面のを明され、1つる解析等は、2010年からはは、 またいとこれのもの表面でもありませんはあれるである。

### ②4<u>2で集まるためでは果から数</u>

・ 特別で、必能を置かばかによります。ショフを表した資金はそれではないです。 一、外に対象しているようです。 これではない。 それに対象しているようです。 これではない。 これではない。 これではない。 これではない。 これではない。 これではない。 ないではない。 ないではない。 ないではない。 ないではない。 ないではない。 これではない。 ではない。 これでは、 これではない。 これでは、 これでは、 これではない。 これでは、 これでは

### TECHNIC SERVICE.

- 1、19部分ではないとは響くでは大利に、1個合品を製造が多く砂に大変な、質 置のいいしゃの場合もい。後の動はツーでは、を経済では、工機制ではあてられ 研究、対象表の機能と変数が存在なるなどが開発を全され、で、と称下される( of regarders and an interest of the constant of the subsection  $\pm 2$ ・・ド・・・ 何も、「うちてもも、もっぱっしょうしゃなこだった。カーバーチン取った。 在中国大厅的一种建筑的 "你在我们的人看,我都在我们从我的事了,我会会会让 **豊大も子は利力者が・タニュー・、集ままは長がその代われ利益のか。たち、の**  $\forall \theta \in B(x,\theta) \land \theta \in C(x, \mathbb{R}^n) \land \theta = 0 \land \theta \in A(x, \mathbb{R}^n) \land \theta \in A(x$ - 我が家屋とも見ず事でもは、世界では厳しは英重の (1)。まちらげなり、(2)。 File 1、ラインストルスタール、大は開発的にあるいめないのはは、数型は自己表表表 マのもちび かいけい にはなけい 一、ファファ ではしゃ スキッチ もんれつ ストリー 、東京大変、デラストで表示大阪では他のはいるほど、一点とは、高級を信託する。 さきと関うしている。 雑日がら オールヤ連る カール へいねんしださ こうはぞんも Transfer Market Control of the Property of the Control of the Cont . His service is the State of December 1 that is the second of a life to  ${\cal C}$ (1) 10 のから進行の対理はセトール、利力が確立した。 1 発表を止した。 A.科  $\mathbf{k}_{i}^{*}$   $\mathbf{k$ 1、 相違的に表立して、エト・ーレールのでき実際的にいるのでできまりのの先が、 where the constant is the constant of the constant  $\theta$ たられては、そ、と思いた中でも様子を知られたことができる。こうですとことは - たいの味によってもログラもい単元度である。ま、転音はなる。 2 ちゅうりゅう A 、元元、中立、t=t/2 2 ない t/4 軍権規模と行うする t コスタ 円が与い 紹介 これは、しゃいって自動を及び、こんが将本を基礎的につぎつけませいようと。 COLUMN TO A PROSPECT OF A CHECK AND A SEC. OF カマンボベル・ディー (Agents) ステッド (大変が) 「カップラータンカル」の違えな which exists a substitution of the (1,1,2) and (1,2) and (1,2)見とうわか。たり、**型面**ので表の表の構造器が、できるできる直接器に大機会

ことでは「そうか」のように十二、自合権との最近のものからまのはました。 を入っ、場合に対し、まと出位に、主がされ、カー・ファンニューションは、 からまと変えて、自動表のがは、からしては有る動を重視的な用さったが、ま の対象にからはなます場合、特別の変素によってはも成立の面です。同じ数 置した。ほどがはまましますがはチーマーとしてものが用されましまがある。か はしませている。ライントルトルトルトをはる中央観点しよったとした。 ファットスの年間は、事故がは、よののが、19年以上のとはの第二、の しかが自我なけられてする。これで開発といるこの事で、第一と同様的は ではたりになってのでは、これで開発といるこの事で、ないような場合は ではたり、カントのでは、ディーをは、対象には、ののでは、 のにより、これでは、これでは、ままには、対象によっている。 のによっている。ないとは、ままには、対象には、ないないないない。 では、ようには、ないないないないないないないない。のこれでは、 かってので、これでは、は、これでは、これでは、ないでは、ないでは、 ・一つでは、これでは、は、これでは、これでは、これでは、かいでは、。 かい ・一つでは、これでは、は、これでは、これでは、これでは、これでは、かいでは、これでは、  $\pi$  人名文明的  $\pi$  以下 1.1 使 4 能 以 紹介語 (2.25)の供給するがもいった表現など |東京大学の12世界にはいい場合とは12mmにある。 (15世界的で、日本の世界でも「15 ある。ましお祖子、本の集、東京制造すると、(名称の『東京』に共和のようで ,在《春春报》,是原因《文·明》《《夏·默》《西州亚》《文·《《《西水野》》 あいは突には1万元にいるこうに返出るからしてい。理論におられば(指導の例 ことでは、1人の中のは、独立でいたは最近が上の30元の乗りまたが立ちかしる  $x \in \mathbb{R}^{n \times n}$  、  $x \in \mathbb{R}^{n \times n}$  かい  $x \in \mathbb{R}^{n \times n}$  の  $x \in$ を受験される。40mm年代のようでありません。 Profit (1777年)というのはない。  $r\in (0,0)$  and  $r\in r(r)$  and  $r\in r(r)$  with r(r) and r(r) . Figure ・ドファイブスマー 中田 マチンでは しょうをある おけばねにおり (一種的  $\Omega_{\rm ext} (Q_{\rm ext}) \sim 2 \, {\rm ext} (P_{\rm ext} (P_{\rm ext}) + P_{\rm ext} (P_{\rm ext}) + P_{\rm ext} (P_{\rm ext}) + P_{\rm ext} (P_{\rm ext})$ アは、タから、「くれ行い取り合か」とも、同性にして、タッカー、メルを通じ 立語をプロッスへの、そうの数で " にいね」 エスター 2000 (20位) これの 200 -水構造製造は、様的なもののを置いて、マーステリーの構造Appとは、何り向けま 、小のもとはあった難のする時は、科学でお客口で、なったの中での様子100千 . Mercy ( ) a free very very action of z . Residence -1 and z . 电影的 1. 新月50年(54)3(1. 我看着图17家园新月 3.44月 1.45夏亚亚高水多美洲部) 9.16年 選手・リで持ち(あをもの側に関す)。 しょういぎ・・(の7×=・・よう・25) CAMPAGNICAL STAR STARTS AND CALLEGE MICHAEL CONTINUES. - 声がいにもつく しきしたしたくさいの名 自選支出しを運動してにき かったいか 被杀,或为他的一个大量。"""我心。然后见,我还以《海安世史》(""为这样 発揮されるはユニニン庁の選( in べき: ・ジョ)、そんではを設めた日本( , where  $\beta$  , is the decreased samples of the first space. ラ書をおいりさなくもの (x 100 mm) (x 20 mm) まちまなかた。おもり24ではたまた。  $\label{eq:control_problem} S(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}(\mathcal{C}(\mathcal{C}_{\mathcal{A}}(\mathcal{C})(\mathcal{C}_{\mathcal{A}(\mathcal{C}(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C})(\mathcal{C}))$ **医成合量更多的**。

この、記事がない。 () はいいい 主義のことができる。これを選出される意思 いれいをはない 単二 はなるのがは 知動しているとのできましょうできないが いっとのできます。ことのできないようなでは、それですがないようできます。

、さいが、シッシーであっては、数据数なよりから、販売業業。 対する他のだ 野球自立をおけなえられば可能であるという。 かんまいでした。 発力では、 強い、実際では、当年度のようではない。 かいかけ、国内のは近の状態 さいたなわる1では入りませた。 かよ行われ、当日からのなど高いは近から呼吸 時間に大きったのは含み、このから発表にはなってよりにもしまいますが、 かれて、トルールののどとはかる関係の代である1つによれて、また、今上の までななった。 また、マンチである。

- 12 ものは、15、18、18単位は、計画のますが、ままでは19月の後のは20日 で含みまれていいさんとも記念と 4名(おく)を見得明年で表しておいたでは c. マバーヤ東国とは1、1、1出版 101元益を入り国体制及物で真質的では、500%。 遺伝される。ことを保存が原因で、反応と思わり、時間を見れ、内質で集構的は アンフルフバ カル・リュメリンが発展等4.05できなしが、より発すったして定士 マンダー マガクライス 全形 USBMIC stri まえずらった マード・スカッぽん はら「も」で表現をはて、イントの事でのがなりには重要されるとして、そこので  $\mathbf{w}(t) \in \mathbf{U}(\Phi) \cap (\mathbf{Z}(t)) \otimes \mathbf{y}(t) + \mathbf{w}(t) \otimes \mathbf{y}(t) \otimes \mathbf{$ угамеры і сомені іннят приколе по людіям. よは有をすり養され、養好した。何は少野にロショナ、秋・天然自己して始まれ に使わりてよる。これによった(a) Exe V製品はレビー・バーゼバンとうわれて置 **あさらこのではこうかりも学の意義をでし、このとうよくから知じられる表現の** 名献のも、行うかもようとなったにはなり、名にた。だってもようの知りの事は こいる。3080~100番ではあり、大説は自然を成だり、時にはは、大規模 型表の質に大手型の特殊になるです。 また、第1 中国ではまればいる。 対象の質に大手型の特殊になる。 V. ....

このイフト、アウスト、スルをおおかれ、マーラのできた。 これを見つ せんのできな、でき合うな、シェインを実施し、機能の手造してからなってなる。 また、意味されて、日本日本日本では、またまし、これのからものできる。 などいうとなった様々なつべて、パイン、できて、これのからは、またではない。 「と、あからをはない」の連続していませる場合をいるからなかが、これである。 またまないという。

、当成での飲む紅豆の口を養えなる。つまは、 同じ、 表示がおして多しなされた - 「我は日本の日長後の44タン」としては年度の配名を連合的に表現するメディア  $\lambda$  A (1)  $\lambda$  (5)  $(\alpha, \gamma)$  (  $\alpha$  )  $\gamma$  (  $\gamma$  )  $\gamma$  A (2) 基準化 (  $\alpha$  )  $\delta$  (7)  $\gamma$  ) (  $\alpha$  ) (  $\alpha$  ) (  $\gamma$  ) としょかわりも、よってお自然質など、シャと与れれた役割(の主体は49円)  $\label{eq:continuous} \mathcal{B}_{i}(t) \triangleq \mathcal{B}_{i}(t) + \mathcal{B}_{$ ・魔性を14度をあれるにはなったになるだっただらも・1 タッ 。 人名はられる を1g1」を使われたが、1度からから使う、ラフル・ファイ・シテンを用さることが  $\tau$  かった。 かんれ いっせっ かっ 編本語 、他表現表は世界 重な ピカトン 単原作品  $\sigma$  , C ,  $\partial C$  , T , v , v , which with the result of the definition of C $\mathbf{x}_{m,n,p,m,q}$  不是的情報的  $\mathbf{x}_{m,p,q,m,q}$  的复数形式  $\mathbf{x}_{m,p,q,m,q}$ このから、ラブルテム代記一時ベラブ・ベル根心にあって連載されて、原義など CONTRACTOR ACTIONS ON BOTH MISSION CONTRACTOR OF THE 1位置は他の大きたが、ガラリには多たい反称を4.0  $\alpha$  、 The  $\alpha$  ・  $\beta$ によるで本語を行わるの存むなどで満ためでMMを拡大を発出されただけ、東には 確認な場合を見れたいない ならかい。 三人は、はなりー ( 事・事・の きょうい みまを 聖 う )

CONVEYING TRUCK THE CONTRACT OF SECURITY OF SECURITY BARBAN MARKATONI OLIVARIA IN ARRIVA ALBERTA LA ニューストウェンにあたり、は同いではからは異なりが出場の可信されるニュー ののようののの。 はななない。 なじかりのかいではいの世界的の元月ままですが こうていたティクスは、本格をよりを表現して大っていたしょ。大変的には、質 たちゃくとは、最後はAの下側であったが上のこのできる時代では、コッツ・フー トラスクスとでは、前のな路は、横の数距隔はつの域が11、できゃの観音とから 連続的間がは過じたものでありを含みません。 がんか出りなる代目はとしては、 ばばれた デレッとと ぜんごうかい A A 基本会 インチルのうき レチャ もんのう アク ことの本手合作、相触のファレンはいるのです。(このり首任はなび)は、これを た。 (お)(80の) - 5 の ( ) / 完議会長といってきる ( ) (10) - \*\*(5) \* (4の) やっト のまでもは8分に関する100年後にいった。2点ですから、発力型音を一度に対象した。  $(x,x) = (x^{-1})^{\frac{1}{2}} (x^$ 大型音楽 (人ももと、ちょう・りょう・1 ノークロウルチック、アア・コード) Control of the registration of the second of the second ターメントラス いつ 智道がある ステル系がたいに 気をがたさり非角点した アルスプラスを必要できたことはは、美国は対象が、カンス基合有事を確さした。 , we have the highest section of the property of the  $(\alpha,\beta)$ みは、 キャンカにずいという。マキン ニュッグコンディー (たい・いどの句) みらずルメニュートで、大夫皇を体するの。RT(さら)に乗りのです。 本名 \*\*ライト#1またの、イミューマールターで、Mの製造で、製造を、メスプリング 现代 2、1201 有名类类型处理 TEAT (11992) (11972) 满叶色 (新文画作文 accordance.

・ 立ちぬか、400、このですが、100、 その(・ からねべ、から) g ∈ (の) た。 ロートのプログロ (東京では、ウェリン・(で) 近。 2 − 2をディット・ ・ ・ パグ・ウィット こことの場合 へいかが モニン すべかか ((なれ)) 一 1 等 写真がなか か ・ タン付着な サル油 正文化 タンペグ (ようなかな) ・ カーバ またではいます。からいた、これでは一つ作品を含めておいた。 2013年 「最終的には、その情報の、自己を示し、情報用、機構用、一字中ではない。」 「よっ」、記載的ない最近でありから用いるのでものとの情が見っている。例れる なっ

- 1、「大日は一日により、1911をでもままりませることの発生の最大的にいったり ラスス、エリールド 1995 自然気管シャトルを開発さる例えばんだ。現在で構み  $\eta_{AB}$  ,  $x \in \mathcal{T}(0)$  ,  $x \in \mathbb{R}^{2n}$  expectation ,  $x \in \mathbb{R}^{2n}$  ,  $x \in \mathbb{R}^{2n}$  ,  $x \in \mathbb{R}^{2n}$ では、「QMではなどとは、カーマン・コン・スカ製料、乗した。4つ Sa A B are」をデータストを作着におけて、イングをステルステン製造される。代表で  $x \sim \pi m_0 + r + r \cos \theta \sim \pi m_0 + r \cos r + r \sin \theta \sim \pi d \cos \theta$  , 下記부 | 古香香 、名は表記1、| 副長 200 年 | 現するため感染の基本に一つも本の様子の性 たほれが与ないほうだるほとの(と知るまな)。 大阪 スパーン・アスクを集める  $\Theta(\omega)$  of G , which is the G denoted by G and G and G and Gage  $P(\mathcal{F}_n)$  (  $P(\mathcal{F}_n)$  ) 一点 id  $\mathcal{F}_n$  (  $P(\mathcal{F}_n)$  ) A COOT II **以上**別な (-1) E 2.5 (-1) と こもぶっかき それで よだまがた しゃんと がいっぱばら 優さる というしゃ しんよう しょくせい いいい 中本権所には不動所を対しては、例えば、安急性には Such as  $\underline{x}(a)$  , where  $a \in \mathbb{R}^{n}$  ,  $a \in \mathbb{R}^{n}$  , with  $x(a) \in \mathbb{R}^{n}$  . In Figure 本の設定はなった。されて、200日第三とと、本側にく当まるが異なってあった。 最終でははいれば(単格の元曜を正してはあり、(20) なりによってはなり。)。  $\sqrt{\mathbf{n}}$  (2.5)  $\mathbf{n}$  (2.1)  $\mathbf{n}$  (2.4)  $\mathbf{n}$  (3.4)  $\mathbf{n}$  (3.4)  $\mathbf{n}$  (3.4)  $\mathbf{n}$  (4.4)  $\mathbf{n}$  (4.4)  $\mathbf{n}$ 

・サー・・ ちゃくまでくみが自由されたられ、 いれが下りゃくをできました。 マン・マースメンジャンを持つ支持されたほどがあったものものものとして図る。

(1) またし、インボング (ベルモン・サルの)ので、オモン東京ラインコイン東。 サンタングル (大きなような) ひょうだまか いわれた 女権利力に立たなまます ,还有分件和代替的: $\Delta_1$  与相对( ) 对,例如证,以证证。 以证证,以  $\lambda_2$  ,以  $\lambda_3$  ,以  $\lambda_4$  ,以  $\lambda_4$  , えば、を破り、後を禁むさい答案に「ドラスタタ・ルの存在をいる」、フェッカ たとがお思わる。とうして、ここに思るととしいる人とはが展覧に終った。 ラマ トランタンフーバッチを関係する上で料しても平成な子を多な4例かりでは、1  $g(x,y,y): g(x) = g(x,y,y,y,z) \cdot g(y,y,y,z) \cdot g(y,y,z) \cdot f(y,y,z) \cdot g(y,y,z) \cdot g(y,y,z) \cdot g(y,y,z) \cdot g(y,z) \cdot$ ジョ・タンド (名は単語) さんれき 一声 こうきょう (何うとう 行り) 温度機関係 4 うきょうシティック ログブ・表記画をといる ログブラッドが、最初がらない ませ、三葉(A元素)(2000年)(2012年)(2014年) カナリー・カール そうかりきす  $r = Q + r \log \frac{2\pi}{2} (1 + \log 2 \log 4 \log 2)$  , and with the resolution of the  $1 + \log 2 \log 4$ よっだり、アウニジカードーボッドこうタの個質の高をさせてついます。ラー 取らずらいなくとも HERCもあらず、1 1 裏の酸化物では成化物・さった過ぎで ☆できなればまがたことはリスカと、確かでで一点(・) へき、金き、女庫で メルチしき しきょはさいにはおおする もっちょう イオ おけ 配化機能品はタブス 1. 通い手には実験を存在するとしませる。連結してつる際には合ったが、本義の との経済が強起したいもあり、カッキュックラク語(本述)で、東京学の研究的 さいくとも、からの上になりから、155-17集合情報を開発としまります。201 ならなーなられたもの、後年は、マイ・コーディングを有たコーネ。ゴインス  $x_{i}$  , the distribution of  $x_{i}$  is  $x_{i}$  and  $x_{i}$  and  $x_{i}$  and  $x_{i}$  and  $x_{i}$  and  $x_{i}$ 後継される時間は、ポープトリアトル1 いせの気度を対けたより ★レプラ × 1条 現すないな(一点などが多いの性はつか反抗の悪いな、 デエルの出されても一部 、サマックの中では、特に体がさきでする強くした。vs. 17 はんぱつあり、。 rus 夏 3 内容 過ぎをおげる。195、食む食メース ちなぶキャ 作ってん ごねっとのご もっ、一点のこのよう。これのできょうはたいなぜのちょ素がは確なくなりです。 こうなく ひょうへん が起れられたと ニジャンラットランド 12 名信を借る側は、記録 使用的医有进度的反应。 - 反逐队操作系统或引 的一节的企业,中国可能由力 ういている。我の自己体で、それ着自己の内閣としてはそのなりをもうです事

|投稿された主動と「よりず・する皆ま在s || 表名 × 9次の 1 くねにラットテラ。  $h(n+d) + 2\pi + 2\pi h d(n) d(h) d(n) + 2\pi h$ プロールスプラスでは、マーバスプラスで表表にの表面に対したほどは過ぎます。 アカダミの開発性でのある。このアウェースがいては、質気点の悪力の少なく TO SEE THE PROPERTY AND SECURE AND ADDRESS OF A SECOND PROPERTY. ション・ナックフラナムドイーは何の神ではの過ぎする。他はは、日本気をかれ、 로 145800년생물(12.4명) 일임이 지하는 그 (x,y,y) 기가 (x,y) 그 그 그 (x,y)メールフィブ 「全球性に必要する過ぎのは、とできるとうなるだけを使えます。 ウムが終れるいもするとはいかする。この特性質には、食えば何**は登場**なか。 がいフェッフがた4個時代のAMA中に作出のです。 かけまける。 セッカン・コ  $x \rightarrow x(x) = g(\phi h)^{2} (h)^{2}  $\mathcal{O}(2\Delta \phi) \nabla \Delta \mathcal{O}(2\Delta \phi)$  . With  $\mathcal{O}(2\Delta \phi) \nabla \mathcal{O}(2\Delta \phi)$  , with  $\mathcal{O}(2\Delta \phi) \nabla \mathcal{O}(2\Delta \phi)$ p. は其事の策を、ストルップラックでは製造するです。この選択される種のですかが 音曲ではなど便士というと示念(problemail of Look (20年を三世間によって)。 、生みの移行後があるには関すられた。 やまくまいしき マムムで量打き力 サイン 18時にある 6.0 Lega 解した。このでき、19位置数1年では、19世界である台 学のOptimizを含ったできる。4からせんりゃずにもある。これはコールサ 1.15液の性のスプアを行ぐいる2000速度は、一時間はかり、カーブレデアとなっ 日計三によりで25万里三ハード マキャンを発力系統(なまき以下級を分配による) アステング (1990年) から乗り口・19枚 (1)・19**5日** - 1月中(1997年) されるほう 発動 ロースイ 長野 ピンパッカー おしげつ 一直のは、 動の様々すべきです 表情仍然 (1) for the larger of the property of t もらの、カンファックは、無くしくの、遊覧でいるとなりの意味に乗りまざる。  $\epsilon(\gamma) = 1$  . Which is (4) with the state of the second se スードイフは「我は、カラーバッグ」と大夫を最高や作り製造されて、 とくべ  $v \in {}^{\infty}\mathbb{Z} S$  with  $V + v \cup v \in \mathbb{R}$  , this end is, we also have  $v \in \mathcal{C}_{V \times V}$  $\mathcal{L}_{\mathcal{A}} = 0.6 \times 60.05 \, \mathrm{deg} \,$  $\tilde{\Phi} = \pi + \pi (\tilde{\Phi})^{-1} ((1) \log \pi + \tilde{\Phi}) + (1) (1) (1) \log \frac{\pi}{2} (\tilde{\Phi}) + (1) \log \chi + (1) (1) (1) (1)$ 

・上記が行う権権を利用するととしては、それがありませ、それが一、メガ ラー・スカースト ダイ可能できるとは、アメは、タルコの種種はおお グメスティン・マイ・カーマーは、北京、佐藤子の美術にありなります。マヤ メスタインではよりますは、ファンと、大阪内におからなります。

- [4] 1 (2) 共作性 新生物的 異なる 観光 横横に (2) 10 カーバンディ ファイク カウィン・デ プラ はな異性子を取り使い。 軽に行る かもない 犬がち はしゅくげい 東京重量者の 10.5 とこには19.1 ターマングインタルでは19.7 では、単年機能して予算業業業 アンスドル出りにきなった意味メールンファックと11年の音楽時代と呼んだった。 , and a Betty (m) , with the contraction of the specific product of the specific (m) $\mathcal{L}_{i}$  , if i , where i is the state of the stat ではる音楽をはらずる。アクルニもをは、2020年 屋内のラブルの中、704の数 名 3 5 5  $\lambda$  3  $\lambda$  3  $\lambda$  3  $\lambda$  3  $\lambda$  3  $\lambda$  4  $\lambda$  5  $\lambda$  5  $\lambda$  5  $\lambda$  6  $\lambda$  7  $\lambda$  7  $\lambda$  7  $\lambda$  8  $\lambda$  7  $\lambda$  7  $\lambda$  8  $\lambda$  9 ・ションではある。いつできるアメインではインダー基を構造する。大田俊之の形を A. こばらかに集中的できませる知識を思えます。このでは20mmには20mmに、2mm 当りすり組み引きにいていた。2014 かき。ガン「衣造成は心気室的ガンではは #200 さんがみを、1 | ないかまりく、はつまましている。 もうく #4 ft しんご CPI-Military addies in traditional Companion Review Woods CPI. - 10年 よく食む シオウリ なわけい エキャング・ストスクを含むしょ 乳の呼吸ない  $\pi$  with the temperature of the equation and the contract of the second contract of the se  $\pi_{\mathcal{O}} \in \mathbb{R}^{n}$  . В  $\mathbb{R}^{n}$  о  $\lambda_{\mathcal{O}}$  у в  $\lambda_{\mathcal{O}}$  в в  $\lambda_{\mathcal{O}}$  в  $\lambda_{\mathcal{O}}$  о  $\lambda_{\mathcal{O}}$  . Совем まますできます。このに方がありまり、大名に不楽り (4)からといる様では1 を無 海豚は食物であるも異変な行う。まちかけら、トリクラッとを発売していませる (1) 阿克尔尔斯 (1) 1. 原子 ,只见我的"老人我们的你有什么的的女儿的有些难道 原色  $\mathcal{O}(\mathbf{g},\mathbf{g},\mathbf{p},\mathbf{r},\mathbf{r},\mathbf{r}) = \{(1,1),($ ● の呼ばれて1 C - のードンコナックでは何のスタンのは中 14 C 2 (C) は 2 km ・ ラス・マイーからいべい ink ライッ(数) おり付きがっています。 カラリーは the type  $i_{t} \in \mathbb{Z}$  which provides a supplied with the soft of the  $(a,b) = (1,a,b) \in (1,a,b) \cap (a,b) \cap (a,b) = (a,b) \cap$ 毎、製料するなかには、x、15、2年、25度日(a)にありて、1、1、1時を製 □ イキック (31.53)( 型のロース・アイン・コンター・コンスをは書きたって発益 有证的特益的特殊,这种证明是中国中国。2015年4月中国中国的发展证明。 さってんが、この連集が、セスマードでは、これをはられて、シャガッド 将軍

where the restriction of  $E=\{\{a_i,b_i\}, \{a_i\}, \{a_i\}\}$  is the state of the state o  $\forall \delta(\mathbf{w}) \leftarrow \mathbf{y} \times \mathbf{g}(\mathbf{w}) \cdot \mathbf{w} \times \mathbf{v}, \ \ \mathbf{u} = \mathbf{v} \times \mathbf{y} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{w} \times \mathbf{v} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{w} \times \mathbf{v} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{w} \times \mathbf{v} \times \mathbf{v} + \mathbf{v} \times \mathbf{v} \times \mathbf{v} \times \mathbf{v} + \mathbf{v} \times$ されば大に火暴した性は小を少さつかも思るいなど内につきは死動いで、火温化。  $\sigma$  (C.s.) (2) where  $\sigma$  ,  $\sigma$  is despite the results of  $\sigma$  ,  $\sigma$  is the  $\sigma$  -  $\sigma$  -  $\sigma$  in  $\sigma$  . Then  $\sigma$ イ 豊を得らればです。(TAMEが10、1 45 たっぱい グラックだっ 労働力いられない えゃり に調を受すくなったき ハーチー もりことれるよこうひき マンス 、 ( - 1. A.の ) 相関と、 A.C. A. ( - 2. C. A. C. ) 配属: スマ海州、スラメートの元。 センブラスという語典など写真的で行う相互も致べし、表は無体を多えてもな これほうしゅう。 スペリー中の行いてき おとがいったく 1番をしたり、3.第1点  $x_i \in SN(\Sigma_i)$  、 为るのに無利的地間  $x_i$  を担義 、ないもっかった。 知るのは、そ  $\pi$ の名称もともはず 存て、タイプの (対方)によるいであってとがなる。 しょ 横谷田 いったは、つもいでと思いし切らだったのではいる。 キャイメータサ かくいぬき  $\mathcal{L} = \mathcal{L}_{\mathrm{PM}}(S_{1} \otimes S_{2}) + \mathcal{L}_{\mathrm{PM}}(S_{1} \otimes S_{2}) + \mathcal{L}_{\mathrm{PM}}(S_{2} \otimes S_{2})$ - 特別の進行を主導的の大・多の下は、後指して、経を通り返金で中で、大きか  $\chi \nabla u \Delta \nabla P + 2 \Delta p \chi (2 + 2 \Delta p \Delta + 2 \Delta L) = - 2 \pi + 2 \Delta R \Delta p^2 d^2 + 1 \Delta L d^2$ 調え場合が、これが、大阪、ガンプラックスをサーがは、発表なりライト・2種 表。 (表に、 セス・ ) - マスターバステクロ (学をより、 インタ・フェイスカーリッ (4) 第20章編輯を記えることもできるとも、「編輯を記録は50年代の日本は、 望を削っした。必要としたサンドー、(オポードナノのことで、50人の月41) [1] **起想は、大名物別で何くなでないは、できるようかで、まはようをが何には、り**  $z_{ij} = -z_{ij}$  、 ののできない。  $z_{ij} = -z_{ij}$  、  $z_{ij} = -z_{ij}$  さいり マンスペーツ (1)、 第二次では、自己しょなく、各種の企画を発生をす。 当年为办内,但是遗憾的话的时,并是自己的规则是,自己对人员工部创《K. 无证 下もの (x, y, y) 、 (y) 、 スキャープ ちょりえ用け 「小笠井(食みた)」 書談にはゆてきるがあり、野園か 4)で実に見得てき、性質のしまりも多りもあったかし、肝臓ベースでも取り及りた さというなら知識でもです。 一致からなんきょくじょがつきょう

 $\label{eq:continuous} \mathcal{F}_{\mathcal{F}}(\mathcal{F}) = \mathcal{F}_{\mathcal{F}}(\mathcal{F}_{\mathcal{F}}) + \mathcal{F}$ 

・ マース・ファイマットと対応するがは、全国の小品様を取り、現場のを通言説 Times state は、お見事も表現式で、4、マイターイプであるかに多典者で掲 表はなる。北京戦が同主、統160 編集 100 mm 200 1 中27年 6 1 元 万代首() マリ新り、ももく おはた登出ないが終わせて利益を当り得れたりで、頃、は元の シンステストを通り返り一点に表すことのより一次スキー製しまる相様に発揮 カラ経過機能のは、関係、直接ではおきて乗りませんが、今日最多のよう等なで、 まずぬき 1、 4 ましゃは、 1 きょう 1:直日決会では下させる。 不足な 七海熱は果 ア 知しれており、また上にもとれて、ましてか、そんに手出しを発む。气が層底 機能 異異なれた Section (一位 大変数) された、 com GiMaliney G 「Pinns, This. The Lat. 中華を終るする is to not hill かばなど 自なある。 - 化操作出し攻役のカリンとではた最終されたマスターバーストラッと希望から < g + (1 + 1) + (1 + 2 + 1) + (1 + 2 + 1) + (2 + 2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2) + (2 + 2)ライスれたほうとう (特別研究の) コンピン こうかーバッチャラ (はつ) 内心之的  $(A_1,A_2)$  ( ) 是为主义的。 $(B_2,B_3)$  ( ) ,  $(B_1,A_2)$  、 身体的  $(B_2,B_3)$  。 通常的 一点機の うし においてた シャン・シ ししょーマスメージ・ティラ さっきぎち which will fix the substitute for the structure of the  $\mathcal{T}_{\mathcal{T}}$ ち 機能をもくなっ あいるい

Aたとでは2.4名をお付いたが、大変中におき組みしていたのと、「かた」では、 と聞えて、くのに、近には何は何ではることができる。とは恐って、ハイになる 、逆は有力に発されておお願う集中のいるにおいれないようが現在がり得る方式を ディカッツ、 "んり」 きょう ことをつける カキのた 可能する タメントルときちょう **はなけっしょうしきトレストル、別かっまドビ下げ、上げらかれたますしょがた**  $\label{eq:control_problem} \textbf{AC}_{\boldsymbol{\theta}}(\boldsymbol{\theta}) = \boldsymbol{A}_{\boldsymbol{\theta}}(\boldsymbol{\theta}) + \boldsymbol{A}_{\boldsymbol{\theta}}(\boldsymbol{\theta$ ま、ログラーシンを対けたははほかは異なるメートの音をで開発されるとしかの きしつご 1十つ もかくとうすいだけがく オステー・・・カスタ よのける 3 接む 。 うれた バック、ウラコーの様々ケーン にあたるものも今まを終る (c) ままかに ⇒は近ば行気が使わずすらでいる前層であるいとである。ごのよせを形円 | 皮裏 格がみため、主動目の内がチャンではも確認したです。 1 地変い たばた 1 - - - 2 利制にして中央権力権だった中へ(15度37年入で400m) 前が高端すって、中国独立 月100万年9日 - 日は11万百万子を7日の最初できますができる。を14日間に、155  $\Phi(0,T) \wedge \phi(A) \geq 32000 + 24660 + 6601 + 660$ た料理の方をは物に付けるようなものでは、海中は180、200、海路のはは、1980、 (24) (「神経の名(4)機関中語(1994年(77) 特別できます。 こうしゅん 桑 STREET CARE CARECULAR CONTRACTOR CONTRACTOR OF THE STREET ■10万元を作り表したは、無人という後に、被告はなった。 だん(新聞用は入り) 呼 重要を入り出すから性は強い分配したと言っていた から、同うに名の味られた。 、製タフルグーンに合っていませるとはMOSPICは、で、内にするしてきた前に (人名 \* ↑ 1) ※ → (人) もずる (まつい) は、ようではしばきたっさいであれた場合。  $\gamma$  ), 各権  $\gamma$  コニュー  $\gamma$  ) うきに対け 情報 (A.S. 豊立と性血性、  $\gamma n = n - N$  監し方 たいこうでもは近く背上乗ってきた以前がたい回復もであるでは、classon。

ース:ペーテル、食いサントーインボック・75/18を発生されて、ペーター アファイス。ポストルをするかなのであり、ハイタ・あいないも、なのを生じられた おもののアフト・アルボのも中国的にはないが、これでは、これのはなかに ○ 3、マーナン へいてきてもでは当ちゃの名の対象となられる。までは 至さい、この有キューマン(の数の100mm)(あっているものから一のは「で は想要したい。そのが表現れるものは、、我のものがまさいます。」。これを してもたり、十分に対象し、そのし、のまではあるとなる意味を発して さされのよう。のこのまでは、はまれてはたらしている。同じの話を与る場合 もし、表してよっては、できないできます。これでは、のはないがままではまます。

アランとなる点いの後、カットにより(資から集中的の外別の発売されていった ಕ್ಷಾ ಗಂತ್ರ ಇದು ಎಂದು ಬರುತ್ತಾರೆ. ಕಾರ್ಯ ಕ್ಷಾನ್ ಕ್ಷ್ಮ್ ಚಿತ್ರವಾಗಿ ಪ ) the probability of the first probability of the  $\alpha$  -  $\alpha$ また、セミュンチェッチェッカックである「福宝」「ハマン型の間(お人等間です)。 スタストスきん。つい利益などを行わせ当べてもる。これはオニの1年、報道で 大夫(書か」書の公のまた後、まち、ATRAMを知られ、19.0回よの日本を ラッチ だっ魔事 (15)内の見事等すえ行み、たか終してい、だけごん かこえかん  $S_{\rm eff}(n) (n) (n) (n) (n) (n) (n) = 1 \dots (n+1+n) (n) (n) (n) (n) (n) (n) (n) (n)$ 表演に背視表現のグラスとも不能強された。 海ナビルをいずでするのますされる ,更多。我们也会对不当的特性与严重的对象的证明,只要人们的,我们仍要原现特别 は2.後は1世末に47.日本・1.5%。された。大変権は80.5%には特に大いない はられるのです。マットケスが有限され種類で、各種のではデ経りであっている。 漢字 (1.5 グールを工作数が分かる) 横上 ブルダーット 国産ディオ キャリ ロック たんいき もっさいこうわどける 差点である。まで、特別気はありが安断しかいる すいよからできる音楽をなっているもいとなっていません。 なんかを道理コラック **数ではしいも回ばた(中国でもうっ世界)とったかり** 

cate x se 2 Galacia (2.6 Kg) + a Kgもらったの利益に対することの言かるほどを連合からには抗性をご構しま というペイス、海内外、海内的な健康では、100mmの自然の中枢を、関係の登録は (4) 1.1. (1) を標準を見り、発動する。また砂質なり回りも可能はあるようは、10 かいき、ないたの外質2000年、第三、カードを5位等は人に自然をされる。  $\gamma \gtrsim 30\pm 0.000$  (10.000)  $\gamma \sim 300$  (20.000)  $\gamma \sim$ AMPRO A HAP 第1 なるとだかしている。第二人が次とは:1) 間白アートリ 查节 医胆囊 有数格 化二十四氢 医肾经衰化 计图 医自体线 医海绵氏线 医海绵氏虫 医外 門 あたい 利用税を正確からを確し合うがいる。 あみ (を)たい 参照的を基 1. 会議が記載されば職員とは本たは、さけ屋、図り間がは、長倉、、四四が14. - 2017年代 - BRANKSM 、前、プラド、コスログ、コッセは上、東の原味だらは、  $\mathbb{C}_{k}$  at the second of the second constant of the second of the s 三個人の名の表現 海のの しゃこかの時代最近することを発させた。誰も、大 AS TEACH TO ME HER TO SERVER OF A SERVER TO A CONTRACT OF 、関係によって10年から投資は各名の方に第のとはできて、そく、そうかを開展で アンバルを開発されている。を立った。アジャ、ヒッショをさり作るとうから ことが行ったり、より知る、とロスからではであり、自己はは、大きしてみる。 即に、例えば、医院では 気管を向けられ、は直径の、あとこのできれることがの

■ 2000年後期に対するとは「ペート」編集で、フェッスを与って、からすっかは「おけれたのでは、はかってお出した場合した。となっては、2000年度は、100年度には、

|w|=0, ||v|=v>0 ). We also denote that is the production of  $\mathbf{g}$  в  $\mathbf{g}$  .  $\mathbf{g}$  , 進かる、返亡でも、ハード(X内) 簡単とお礼給を取られては、この真を中本書す。 最終的 美人の間を見かて自己など はた トラスライン 主語を見る ティック へいたじ タロコータルとも、インフ・ラフェッタ、江海の元章(以前で装すア・アイと) - みんおもコラット 119年の機械チャツの内部属で、カー効果されらい。取出する。  $\gamma$  )  $\gamma$  2 (1) 直を ( ) 上記(4 が ) 、資金(7) が  $\gamma$  2 (2) (3) (はずくちがく (2) F - 1799年1人・ファップ・コロフトリーは必要的の配信の名のは、まるこ ラボキャリス 、スを終すり(は198番を20回立むとした)が 1.1 y. 25. くこの 2 表には、1.47間と連合するとも1~から、大学者によりというでは一種。 、全のため上の信用のみため、と数の中の点に中でも780g (1996)。 単位4-70g つける は、ドドラ、は企っととこう存在が過去さ、リーンドルティングに関した。 とグランバー 500. (を取る × ラリ・ル・合き向極度 きき海蓋を作る。止をおいるは 水座ともわられ向に完けば A取用関や、よりながに ままっに魅力しょり 20度、近  $\hat{\chi}(\sigma)$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  、  $\gamma$  の  $\gamma$ 1. 1 → 11元 (大型が1974年7月) ショイ・ファックス しょうをみよい こうがた た。さくら時間に登<mark>担の</mark>できるというを創取する 無要さる子にはほおおく でいる |程度です。こういりを注く思い、このが確認で貼りたって、行う状に行うときは Department See no Park 、7就才とお着き合理することだけます。 メイルー 沙婆は食をもら得る。とはおの風にはた、はインーを110時間とおうによって。 うみ アバインリンピーの こうれん おかって もわえり 悪人を得に成って カッカウ 1、22人でを通じている のじょう ロッチをディ しちょん かっかまんごん 二層

食できる。即り、これのもない。カーファーファイを担当される特殊を意味が任 またなから、たたながある。かだは、三角で連択的より表質違う自己気があり またままない。

しな、ものは、RomeのではMalaceをはいる。これでいたくのです。 Romeを受けるMalaceのようにいったでは、Malaceのようから、使用自分を またっとも(、おおお前)。 今はない地でいるであるからのシャップへ、コマン・インでは、東北の中ではあまれてはの音ができません。 とこれでは、東京のは「大家電車」、大が作品、また、他での主な音を見いました。 で、銀月では「大家電車」、大が作品、また、他での主な音を見いました。 で、銀月では高級のお台上ではる音(コンプ)というでは、1911年を開展できません。

- 29 こうに場合と、1 40 (40 実施電気を上す、2005 40 下10) で置むたー 179 で変換している。 連進性が終り、メネシャー・メートンとデザースペート 兄に多り Opension A MAIN (中国のアプライマッパー Pare) しんちょうんしき いっぱる  $H^{*}$  のは続いない  $A_{*}$  大船電  $B_{*}$  一大船の  $A_{*}^{*}$  たけん  $A_{*}^{*}$  エース  $A_{*}^{*}$  インプロス 内操いっせいで、ストリーアメルデッタ ef おおき (ない) 内容・アルゴタ(は たきて、こうときない TEALERS (COM) にいる。本書館から、おおいのマー 長し直右の2010年によったの代であり、例にが12.50年を最初の2年の1.50年に TO A PAGE ASSETS AND PAGE. TO PROPER TRANSPORT AND PAGE. (1) ジー、海になり、・シーナタ・タン別と巡り込む。 スカップ 数回収される 2 (FIRE の場所管理ではオール・ファップ・マ()) (\*企画道とコン(3)) 5) お歌 副国出版にかい 「大夫とい」 (編集) (WESTER COMP) (1997年 1997年 990年の 孫とおけりがく者も安にすべた(ED)と作者すべらか。 気を育 した モデリほうシート (種)と エスをラッチェのほとからしたためなりまると思す れる、他の前に、からくりにおけ、 血肉がされた もっぱんもっぱつかりり。 **限制的機能を使うましたを関す時にもない。そのこの時代ではもっている。他の** プース・2 の  $K^{*}$  (Lin 引した場所  $K^{*}$  ンー)の表と  $^{*}$  ,  $^{*}$  、  $^{*}$  、  $^{*}$  になった の  $K^{*}$ PCコンマーンに設定されてあっていることが、 即の、 Hの重なた A Yになってはあ 塩 v. 2000 (2012年) 上がり、か善時、アーチ ついて着着ではなっておりましょ

あった。これにファインテース・デザルが変更が不足がられる。 またはないが、不知られた。 即は、数には違った人気に表えない。これでは、 では、ようなながら、はしいできませいではない。これできばない。 あん でもらが、これでは、これではなりのは、またべるないではない。 はまい はは、またを使いるようなないのではない。 というとかがら、また。

# 、ス・コー・ステーツ・カルを関すられてよべき上の前に解析されて書かている。 いき、イキ、この数の上はからのに指数の最初機とが開始されます。たちらのことを と、こののいっして、公共ですべき機をませましまだは、・・・・カルを制度で でも数据というませらなっておきながあたが、カル・ナイン・イスにことなる できなおようの名が強力し、というましたようを観光しましたを対していませ

ロメリーの関係することもが多っている。 ・ 生物を表現であったがは、いっない、利益を関係されば各のは可能であれない。 メリオー保護を受ける。 いっながらなった、マー富され、は、上記しまでした。 対立と関係がよれないない。また、バッチ電子はではって、そのマーマー・いる 性がようないは、はいな中間である事情をあることが、また、ス・フリットを

タールル・デアが、・アイルをはない。文字は集合の利され、オート・マップでは、集成を実現していたできた。と呼ばれていては、一般ないでは、「大き」というできた。 本に対してお願いませんできます。

・ 一番の、スイヤのア、立ちの立ち、はとし、ボンド・スクでは、でも一名では の無常さからでは四点を用の上来を、カモリーは、ブイックでは、でも一名では はつかる。以前値がよれる。パイツをよったいではなった。これのでは、でんだら、 いったまたのファミの名角では「神をなった」の最近には、第1ので、でんだら、 についまました。「カー・東で、第一後では、これのは「かっとは知るでした」だ。 の、のでは四点のでは、個を、カー・フェッチを会には中ではあれている。 、このでは、アメリト、の作者のは、これが生にはサイントでの表しないで、 についまないのではないが、これが生になった。というでは、100円をでは、 についまないのでは、100円では

のは、1つのサードのフェックでは、フェンを内容、フェンスではあるのです。 対抗系を行うが、変数では、ないは少数を表し、これがも強いです。アンタン では、この数を終め、これではおいてはながら、より一切を行うよってい とのようをあっては、1つがようではないとのも、はど野野原のコールのは からはないには、1つがようではです。そのもなり事故表をようです。マーマ は、2つがはないにはない。このでは立場の数はできた。シンテンケッシの相談を また、アンタンは、一般ではないが、アンタンでは、2のではないをは はまた。アンタンをは、2のではないが、というははははは、正常をは はないに、このではないが、これでは、2000年には、1000年によって はまた。これでは、1000年によると、というは、2000年によっては にはない、このでは、1000年によって、1000年によっては には、1000年によって、1000年によっては、1000年によっては には、1000年によっては、1000年によっては、1000年によっては によって、1000年によっては、1000年によっては、1000年によっては また。これでは、1000年によっては、1000年によっては また。これでは、1000年によっては、1000年に

|海に接重の智慧の連続機関では、表格コリシーリンストで、ボッドル・7人間 大りよう。ハイテル番組の作品が出った。Lase内は20~20分割を口を立るかなます。 。非常は支前機がは多く。ストスレチャー35g-85 カー40 カララスを排出した フランキ 前に重要が、ストン・・プロ智を変換したりのなるであると、気軽性。 、ためみが飲みの人物(いのがお願)に使わたが、バングラックのマネーの使き Miss of Michigan Complete Committee of the Committee of the Children (Miss) I STOR BURGO SPACES, BUT HOUSE CONSIDER | 利用した場合をあり下げ会議機である。1.38mの15時間は下されたディアール  $\label{eq:constraints} \{ M(g, \mathcal{O}_{\mathcal{A}}), M(g, \mathcal{O}_{\mathcal{A}}), M(g, \mathcal{O}_{\mathcal{A}}) \} = \{ (1, 2, 2), (1, 2, 3), (1, 3, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), (1, 4), ($ Satisfication REPLANTING TO  $\tau=875\,\mathrm{MeV}$  , and the CASTAL CARRAGES ( スプリーに行わるととみとだい。ちゃい物画 3 転引 10925 (リラン作家からま) Months of the Mercal System is a Bull Constitution of the Constitu and the Y - z , thus, which is a variety of  $\mathcal{A}$  . When  $\mathcal{A}$  is the z法主义命令的信息的制度,不是各种的数据有效的企业企图,不是为效果是由,是特别 is a constructed by the substitute of the  $\lambda$  and  $\lambda$  . The state of the substitute 1. 毛製品を使じたので、1991年を表示と、1992年の中の遺伝統の方式の開発

2. の表記、インスターのの手にもで発生されてはお。 一切開発・インタンを発揮して、まさとができる。「神経のは、神経の異性的関すって知識なった。 のはおき、そのかは多様的な意見されて利力的はは、これです。ハーベッチ、はそれは大きには、インスターのの発表は、これのはなるを発する。 あるでは、それば、それは、それはないのである。人のはないなどを発する。 あるがは、スターではそれば、大きな、人のはないなどを表する。人のはないのでは、または、またはないのである。 または、スターでは、または、大きな、大きな、大きな、大きな、スターでは、スターでは、または、スターのは、スターには、ス

#### 成的.所 磁性表示 数

 $\| f_{k} - \phi - f_{k} \|_{L^{\infty}(\mathbb{R}^{N})} \leq \| f_{k} - f_{k} \|_{L^{\infty}(\mathbb{R}^{N})} \leq \| f_{k} - f_{k} \|_{L^{\infty}(\mathbb{R}^{N})} \leq \| f_{k} - f_{k} \|_{L^{\infty}(\mathbb{R}^{N})}$ 

、  $1 \cdot (z + z)$  一番目  $1 \cdot (z + z) \cdot (z + z)$  、  $1 \cdot (z + z)$ 

・3、14、日本権はあるなるがセント キャンはロッドで (48)。これをそれ されらも今であるで置きらればしたが、今で置づけて標本では代になったが。

か、本料を開発がは、移動ではなっまでようとした1をのって、大学、1年本のペー・のでしてもの、Pではい、1・カッドの外の人のため、おは作者を支えする。と述べるので、の、選集であ、利助の様を投資しながは、2000年度、1 をおかれて、1 をいっては、2000年度、1 をいっては、2000年度、1 をいっては、2000年度、1 をいっては、2000年度、1 をいっては、2000年度、1 をいっては、2000年度、1 をいっとのは、1 をいっとのようには、2000年度によっては、2000年度、1 をいっとのようには、2000年度、1 をいっとのようには、2

- 1 、 2000年2月(中央市場の17年4月)、- 4 (4)(2)( 2)(2)(2)
- $T_{\rm c}$  2度ソースを1例なたけば25年 x ma a minimal accuracy approximation
- 4. 4.4. 1.57#
- 1 1 **0\_**0
- $\mathcal{F}_{A}(x) = \mathbb{R}_{n}^{m} \mathcal{F}_{A}(x) \operatorname{deg}$
- ) is the Call Control of the Euler Boundary and the property of the (4.5) to the 0.5
- S = S(S) + S(S) + (10

- 6、克拉住1600年以上成为大概以及。
- 1 1 1054A0 :130
- 3. 2. 26 # N.D.

### Section Section

- 1 Pryntal regular BY \$ 607am (Membra 11 e + 2072)
   1 Committative 2 2 and (a. 2) in (Membra 12 vert 2 mm \* 2.02 vert
- マーク・ディを変わることがあってり
- , , , which with the transfer with (x,y)
- . 4 Allehit Excellent
- 2、 6 - 2 ずいの刊の ちょう 関連書きを紹介。別1 1-3元化する
- う、有一種を大量でからしてたりでも違うです。正置もかり中のからり、
- 7. 1 アイダル発電して、これません環境である。 でで考りかさの第一段です。それに対象領域制度では表示です。 それれている。の用では企業を表示、変化されているというできます。 書手によった。

## - リップも重点 (10 - 代)( 左)(競 介) かい とと(が) オブー(no

(1) タンを保証されている内で、利力、二ので支配を入ります。ため、 (1) できまし、気軽です。またすになってもよっては、できます。 のまでは、気軽でもなって気が、タンドでを含むし次としませるのでも、一点では、大きには、つかした。 (2) ではないでは、できませるようでは、そのでは、10 では、またが、ないではません。 では、10 では、20 では、10

の子をのう。 かいて、プロ位与で連絡で、選手を持ってはいける。 Million 10 PT TO ALT HOME 「FOR STAND ACTION TO THE PROPERTY OF THE PROPERTY

# 9. 3 - 4 · 1 = 23 ± 205 · 1 · +

- 4 JØ 1016
- in so Assert an

 2. See 7 : https://doi.org/40101476. 現金国際表示。如果では「中で である」C 20 : 30 : 4 : 1 かからもんでありませる。

ill. ≨%†7Kle wild nezo diespisch®

# <u>58.88</u>

エッス、マーマンターベッチの内容を指摘されて過ぎた。原は向けて、マッカーマーマンターシャーのはは4、20mmのは20mmによって可能は12mmを指摘するためでは、インブントランターのでは12mmの変更と12mmには、1単の例で使んではセンシンターと同じました。12mmのでは、20mmのでは12mmのでは20

# 戒、 天然でいまった人の神性

र्ज क्रास्ट	Coetà	6,75		591	#21 <b>t</b>	Prilet:
:	17,	N-ta	$A_{i}(x,y)$	200	MIDE:	9,000
0.050000	. 94	5.0	0.00	10.578	1,00	14
6.83180	ĺ			ı		
7.1. 171						

- (8-466-4)(4-4)(4-5)(4) . Likingly, described a fixture

# 57.0

<u>L5 }</u>	·- <u>.۴</u>
교소	100
#	
•.•	1.0

A CANAR	3.1
UNICERSOR	: -
Project N. S. Alice Advances	
anglited (1. WEAR)	7.5
e #	17.5

・1、「神べかられている」と「企画が知る」、「かして、また、「中国 市場 (Mexistic)」では、「大阪 (Mission)」では、「大阪 
1. スーキーファック・・1, \*<u>で入べら</u>、1 デート・1つ・2 スタリー・クティー・2 名、シキャイスのカード、スキャー、過ぎ、近10 7。。 第1 キューは、「キャンシュテーシック 数据したば立動。光光のほかした。第1,34、「編1,55」 211-2世 22周 13の 73年入り以来11、5編末中の第2第3、中でも2、

・ 製料 数例がよりに関いてはままれた。 ちょうべん かいかっけんか の、ほった がいかをおれたして、Jache Hill Line Hall and Conneg 、 置はまでも、そのでより性別的メリモリー Mod Jido (も)、まけいを紹え、は いちのも、見間違うのター よくまが作り出まれて、ログ (まって)した。 また中でもの。

一規制の「スターのタックを含まる。 おかまいか、特別で、対域と表示している。 これられてはなくない。 またしたとの事には、よりの概要を表示して、最高の なら関係になっては、明らのであった。 できょうとかったはないをは、 entro でもなっているときには、1つからも気候により変われた。 と確認にはよったは よった。 1974年 になったとなった。

<u>工作</u>のもご要素を取りません。

、本意的なアッスで、インタウスでは、東陸の3を4両でいる。一ついての60%では、ことでもなる数でななできた。 1947年によった数でななできた。このもったと思えたなどには、そのでは、 で行うなな、第一段ではないで乗ります。 近途的ものではないが、たればをはた たれるはちゃくとかなから、

er in Ablande

ΉA	TAKEN		<b>→</b> ≻ 7 -
79.			<b>450</b> 원급기 6
åц	27 S#3		±9 €97A
6.5	1		$m + m \sim 1.3 \pm 4.3  \mathrm{Mpc}$
1.00	5101		
1.1			A 2000
2.0			<del>.</del>
2.3			-43
:.!	ļ		
<i>;</i> ;	$\neq 3.1,200 (2)$	$\overline{\cdot}$	94.1 0.00002112
	n.t		21

- A Table Pro - 14 A A I La H II S M A A Tely (17 A y なける e e e gra) お。

4.4 电标号程 JPC+ 提出

<b>क</b> ∀	<u> 7- ∓</u> H.
ए . प्रकृतिकार	9.5
0 (42 to 10 m) to 100 (1911 7 to 5 )	.1
F13: 1 = ++)(q)q)	1.0
건조 <u>로</u> .	
N -2	

(4) 人名利(4) カラスト つっていない このまた 55 (3) カラカンス・ルキーと 人名用(1) クロシ 取る事績のしますというしょからかかり ディニュンターのは は1755 このまたごうシェット このまつのもの しょうしんちょう 444 成長する ・1度できなさいはおおもし、ことがありますが、1乗り落葉が起いた。1.1.1 - まつくにもはなななりですが、1つでものできると変素が10でもから。

# and a selection of the selection

10/0	400°		St. C		F	1: :::	ur .
	44 /7	75-76°	З'n	^4	F. #"	36	TRACE
<b>2</b> 0.53, 0		152	13	11.1	11.2	:=	477.51
#55 F	£0e	• •	20%	5.31	62		37.00

、近き ( - ) 、 のました しと人が付入と対象が作りませればない。 たままじませ

# ■ : 着作数2.2.2.3

9:70	Y₹ 39	K-77.	are	-5-5	. ::	%_2 .
	i	34		(the)		191
7°40 A	7.	2.72		it. 1	:	e
5960.1	73			p. 1		
10 0 750	5 369 50	Sections.	979-	*	7 az s	
	÷+	450	3.5	10.5	No.	3.0
<del>d</del> espt, ∂	11-	1.1	104	1.415	133	10.
XHX*	30	7.7	76.5	6.26	1.0	3 .5

# T 177

・ からいトゥーマン・ペットをもちりの性、特殊した。共生し、いたないか ・ フォン・ドッチには、Grace Class カン・ディをは16年を Societ 106 の・ ついです。クロッズのションをでは、マースでは20年度では107年のカン マースでは、アルドロ民、クリ政治組織で発生は有限サイチでは20年度 のはまる、水がありにあり、

	•	•	-	٠	-	.:	ď	1	4	

.: - à	7 6 .1
- ·.	141

nodule to y	1.0
Security 19 (Billion 19)	.04
04 (g4 万 <u>) 利。</u>	
- 21	19.7

サート: 「あいできニザングラックのこうできょんせいべき 名のでは、を見むす まった こうは取れ 1.6元 、その出土がく ロールフェンチではる制み カティ る。作業中、「かっきリーを発症性」立、脱点的、こうり、こうには、て発表さ 表れる意味のコニティな、で述ること、違いです。 ライル記述しまった アイデ where (q,r) and (f,h) , f(h) , f(h) in the contract of the contract f(h)action on the district of space and the SPE of the Conference of the SPE of t たさい サーバ かきここ エスシック アンド 生存な 医はいゲージ いろえいき もっち 到100mm 在11万分的是否的现在分词更加更加。1100mm 1200毫克斯特里的第三人称单数  $\lambda(T) \sim C \, d(2+3) \, (\lambda(T)) \, d(2,2) \, d(3)$  $e(\tau) \leftarrow f(\phi), \ \tau + \sigma(\phi) \neq e(\tau), \ \forall \phi \in \mathcal{A}(\mathcal{A}(G), \mathcal{A}(G)) \Rightarrow e(\tau) \rightarrow e(\tau)$ で発表されならな、フェイスルールー 人間は見べ あこがり 動きをさられるか  $(A_{ij}(x_i), \forall A_{ij}(x_i), x_i) \in (a_{ij}(x_i), a_{ij}(x_i), a_{ij$ マラマ こうは野中で、大名は水の大きをおける発展をしまれて、10日といわれ  $R \cong \S(A) \subseteq A \cap \mathbb{C}_{+}$ 

# 海供<u>用了。19—19月末</u>

・東のシャニティール・ からい 音楽制は (1977) 機関の利潤のメラーベッ ではない(1984) (1984) でもっていないである。 利米 1977 (1984) 「現ること より、本名は編

917-	Z K ATT	ស ស្រាក់ស្ព	e. Indae
·- /			(Ed)0
# 4 S C	- <del>-</del> -	= =	Ali Anibu y
			76:m. 13%
表示数字	fill books	f3 being	11 Service
!	night bear	misser / ma	771 pm - 1 - 53
	:₩	2 <del>22</del>	4
Jer-	и Эмет	th lanury	0.38 (7)
ļ	cite Ten	e - 73, a	77 at 1 at

> 3

# 門さんち . TE.もりとす!

1.50

50 - ኤኒ ውን መጀመር	
<u>8. 9</u>	0, 3, 1;
C. Meser (1) and a second of the contract of	
3.984 (A) 0.64 PER nors	-
- (* *r(*: <u>-6</u> ))	١ لـ
Institute Section (Section 2)	2.7
Security of 2 (AM/LATIN)	2.3
a base ## applicati	: ;

マーゼンブルックルマン、7次また。 第一様にファックスント・カーディング、イナ、ファッターダン・ラン・選を通べてき合けた。全様だらから、シンコードのファーブルを表現しながらかかった。カンファンスを表現しながらから、カンファンスを表現しながらから、カンファンスを表現しながらから、これを表現している。

・ 製造 の関連への対策される出されたましゃながらへんはようなものである。 お、扱いさんことの対するものでは、 Search D1 (4) Bell on y 10, op のは10.0 (10 m) 単位 関連というできる場合関連をおく、不足し関する。 からないではい端されて、エキリアのありられない。計画しばなりでは、ペスティンのでは、 からないではい端されて、エキリアのありられない。計画しばなりでは、ペスティンのでは、

対象、元本に発出される。本は工工をおおります。 本での為、こ 終さられる。 と、以降は、他のですが、、、をした数差をなってものできる。 これの数を得ら、はらは、これでは、これでする。 本での元本は、とれた これは正す。 なった。だい、他のは、これでは、正元、は知りは、といか これによった。だいでは、他のは、これには、一般にはなったが、 これによった。 107 年代、他の、ではいからからとは、、他の、からからから いるはいまで、「日本の同様で、これではなけずなかと一方とは、よっなが また。

### $44.7 \times 6.5 \times 6$

 $\label{eq:conditional} (-1.25\%) + (-1.5\%) + (-1.25\%)$ 



・大型の機能の対す数に関いません。それ、はなった。よっては、だいではなった。 いたなくれる。これの発動にの特別に関われておけれてはいったのかではなった。 は、確認をは、これでいるいではなくない。他は、初いは、と対はのもれては の確認に続くった。これらいでしたのでは、といることのな

## A 1 To strict on the − ∞

	大装作り	স্প্ৰ ১	
$\forall x, y \in \mathbb{N}  \forall x \in \mathbb{N}$			
Armay NG M	135	1,4	17.
$U(x) = 1/(2\pi)/100$			
集合でを	-11		
J()			
<b>IP</b>	1148	, Anja	. 45%
≓9 <b>%аг</b> К	21.0	1. 1	.37
Obs			
president	•		
œX	- 42	ř.	; r:
0.895 ± 2.4	274	.:	j 9
trail.			
Ž(PC1 T	ICE:	r:	17.0
all all.			
1 16% t	1- 62	• 655	344
. Fall			
<b>₽</b> 5. <b>~</b>	- 3	54	611
E - LVEY	3 130	# 557	2 54
メンジュー 資金	_		
≒ ∞益 毎 基 質	3.8	8.1	0.5
Amilia (A. A.≣ w.)			

### 16 125%<u>以份數</u>

・本書はたらのはデートンとのですが、できまります。とのますがは、そのますがは、はのものは、子供すった。これを存在されませんが、というできまりますがあった。これではないできませんでは、 では、自んと例えばはなど、ロースというはないませんが、これではないでは、 考えにもなった。これではないできませんでは、またなどのはませんでは、最多に は、1九年で日のシスターバーで記念的によれるリック地域 シェンスラマス Plote可能とす。 マイチート、身体をは、VTM DEGESES はたしのカータップで マラチょうかり (アン・メント) Style exists (masing), permittal serv オフトレイン会議時長 はけい いっぽっているいる。原まるな、レップストタを乗 おお明珠でしても、白付もいると思わられる。編集では「許さりある」と ちばはな 大きいち 名画家 さってもいけい 出すいを言れた オイナンネルアンタニラ ストマー中への方配とうなが、これをサーチンスト・スケ台とれている。このに み、 **の利!**カラーペックラックはありつから、カラトラーラのほどは、**可**島で! こうたちはいない。 記事の整度報告をも9性、光学校、大学、よりブラックでは replint マンフー うつっこうび Cultistatics とうドマーの (マッロぐるがごう) たち、多くの場合権は、最低に、慣れたのが、ついずも、という概念といわっては べく高大・ライトル・8年、チンタ、カオ、「ちゅんにそろり」トラフ・スタン。  $\gamma$ 製菓 オイタ等に対けて なる人が中の内では ないなく まれます いい にいなばれる Q(g(1)) + g(g(2)) + O(g(2)) {n}(x,y) + (y,y) + (y,h) \cdot v_{n}(x,y) + \delta \operatorname{dim} Y \leq G_{n}(Y(x,y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) + \delta u_{n}(Y(x,y), X(y), X(y)) +$ シブラーツは軽減が行ってって、 $((\alpha, \beta, \beta, \alpha))$ の気がある作る月に至かられて いっかい これ場合がも注意に対し、作機(い出)で、対きのともなる事業のデー シンプラックい (数、見た)にはすが中では収益を (関語の中により大・佐田県 の中かけ入事(17月3カ) 存在を実施整合には実見するがあり、 を組むを得るさ 574555386

# 341.00

# $(i) = e^{\frac{i}{2} \sqrt{2}} \mathcal{L}(\sigma) \otimes L(\sigma)$

「TREATMENT OF CONTROL OF THE SAME TO MILE TO MANAGE TO MILE THE CONTROL OF THE MANAGE

# 81、据鉴了-美科图象的

100	MARK	2 - 7 - 35.1	18 K	44500
٦.	:	,epc*		94.4
-4	٠			
41	1	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	31.4	ħ
. H.	PA Y	•	ca	i
HS	D.	_à	F	D

CONTRACTOR AND SERVICE OF THE PROPERTY OF THE

サラウド パルップ エスを見る かってまだい (私名 ア・ナーバ・アクラチ かった かい しない しがい ー・ドリー 1 ヴァールン 下がけれる 高される まっか しょっぱき よりが かった スーペー・ボール (本名 ないまり ア・ファーバ・デニッとを ない事り TS  $\underline{A}$  ないます。

No Aberson Labertholde

	_'
4 a	+5-
	리스하브 100 - 4 # 강하루기본.
アパック	и:
3-32223	to we
ŧ	pr.#H
iverator (東京四月1日)。	1.4
Total or the first flat of	0.35
おなずり	

. Nota ≢<u>Lo</u>k 2002 (this, documents)

<u> 1000 / 100</u>m (1000 iii) (1000

- ジョック・マキャ<u>油で</u>であった。 たいだい (1908) (表記 (2005年1月)の表面 第1 - F、40 - マインの子 (2004年2)例をは、アフキュー (2004年2) 2、円大学 (2014年2日) (2014年1月2日) (2015年2日)

# 2.5 BN#6

运物场条款 0	在某些证明。	<b>四</b> 关并 <b>了</b>
キンプルン・・		
2 11	¥	-
2 0.1	н	i.
M Det	u ·	8
k L	91	ĮΛ
k:C.	31.8	
V: 0.0	M 8	F
V 10 ×	পাই	1
T + 1, T		P
$T \lesssim 10 \ \mu$	Vξ	:
2.50	< 5	>
u .	K.,	
Market	4.4	=
M404	44	1
NADS	44	-
H 4 5 4	4.4	3
9.10	4.4	18

· 在、所謂:...如果如何的用,以以《問題》:2

- 野島 サイトを新しからからは、野は水道が乗り (大学は400mm) (1997)

**支い 環境値位置による**変元

rs w	드
Acc on (可比电路)	
-place of Grant Act Till 表す	4.0
sacto ( v. 1) ( <b>k</b> ilo 76 <b>L</b> 6)	2.6
■ 大陸監備を「2017年2月)	2.6
Minestone (10) Warn Sub Alic	1. e
sectionare to the Confederation	s.
149	. 6

全体的なにあるが、機能にして、完全には関するので、適等によってのです。 対象ではでもいってのようます。二般では、19月以来を信かでは、そのようなが、 というましまがいずったないには、かつからでもからはあるから、これからして の治療を対かっている発展し、カラッパー様々ですいいの発表が、は関し、そ しているからと呼びなっては複数とな

・ 必用の金の名(2004年、までものの)、40名の2007年間で、そのののでは、その、のではなった。または100年、本ののようによっておかってお出れた。のかり、するはなった。としては、そのならにはなった。このでは、そのでは、一般のないを表現された。このでは、100年のでは、10

ar.

			F 1007	1917		
•		IE!			1980	
-1	7076	<b>F</b>	L (%)	277	W .	0.050
	7.9	180		**	. :: •	
¥		1200		:	2.	
V C		655			26	
W >		56			766	
t i		251			444	
K.C.	1	665	4.21		124	.05
F 1 2	2	411	5.70	2	12.	5 !
e ch	1	.:51	4.73	٠,	486	;
$x\in \Gamma(a)$	4	270	4.50	Σ£	555	1.78
12000	г	461	8.50	٤.	767	2.43
7 E :	ı.	105	2.53	25	535	5.71
20.3 2 3		: 2	24	82	+ 75	1.50
V 1 : 4	٠ ا	75	2, 63	21	+45	s. 41
3401	=	372	_ ;;	!=	13	1.71
19500	-	- 0	1	85	0.	: 25
9303		197	4.5	27	:	
N: 24	2	1.8	L.	41		1.00
NaD.	3	át.	λC.	71	٠	1,194
H 4 (+ 5		887	200	20	üp:	+ -9
H 4 D 2	7	45	5.1	•		1 81
, * 40°	' <u>_</u>	N :	y 1.	×	: 22_	· 64

\$ 17

1		31.		saCaptic	.1	
•		tail			Serv	
<b>4</b> – 1	$\theta > 7/4$	<b>w</b>	0.250	8 10	N	$\gamma = K_{k+1}$
	65	£β		4-	15.1	
Э		11.1			359	•••
v4.3		7/6			452	
With		1::			14	
11:		5.47			- 12	
V 1.1-1	1.2	513	.1.20	126	±0 <b>5</b>	5.5
STRE	1.4	521	r. 1	130	482	9.
<110	1.5	745	0.42	.1	307	+ 50
[X1.07]	1.5	.15	F ""	142	185	0.75
4000		520	5.77	1)3	:33	2.60
4000	1	٠.	1.71	$1_{\mathrm{Ds}}$	433	2.74
421.2	. 1	5.3	5.70	170		· 8.1
ta sina	21	n:	7.95	155	530	1.894
4710	::	M	3.75	137	006	2,3%
4302	913	.09	49.	1	1.4	2,825
8110	н.	1.4	8.61	30	505	14
7.10%	E4	188	+, 51	10.	1.1	(4)
F - 12	1.	****	11	11	201	24
E 5.002	11	417	. 0.	ŀ	53:	1,27
B + 5 +	-7	100	5	15	24%	2.1
; " '	-1	4/3	15	F	71.1	2.17

J. 1\*

A 1*								
		let tula es	1.					
:		11.6						
7 0 6	77/6	40.0	0.50					
	ŧ4	100						
.11		äl.						
43		670						
3.5		291						
E 1.2	:::	रे <sub>ल</sub>	5.18					
R ( ) (	.:	75	3 11					
и г. :		160	2 4					
1915	454	1.30	4.51					
3.80		1.08	1.15					
ger.	Ji I.	690	0.16					
9 :: 6 (	407	140	0.56					
A 0.0 t	405	(1.1)	1.00					
90.64	407	532	:1					
KSDC	4.5	86.7	», ·					
Kaba		4.1	1 45					
K 50 K	. 8	25%	1.72					

2.1	9A
i, vil	1 360,7511247
less.	34-15

			MLT SEUL	CEntral Control			
		HSS.			255.5		
: •	9 27 5 8 3	и И.	(4)	р у.= <b>1</b> %	6 m.		
4.		1555			525		
1.7	l	HE:			244		
ч:		005			23.		
9.5		40 :			1		
9.14.3	:5	1.6	13.	41-	4	27	
3.116.1	-11	209	3.47	EL	734	I. Ka	
MILL:	<=	757	$1^{n},0$	ŗ.	B.	2.2.	
9.1.2.4	63	452	.1.	52	732	1.22	
42 1	· .	951	1.77	52	511	\$ 11	
$A^{(k)} \cap S$	1.5	2.45	2. ¢.	: A	333	2.72	
45:5	23	371	1. 2		547	1.5	
P 2	1:	597	5 7	53	545	7, 35	
MI C	41	••	1.44	47	11.	. 55	
P 7 + 2	1!	173	2,93	5)	419	1.19	
K004	D	:00	3, 40	J	47.4	4, 3	
k i i	4.	9.6	2.36	Ю	507	5, 59	
r s J	41	4.5	11	١,	44.	* 44	
F = [0,T]	*	-:	114	F-1		• !	
\$100	Đ.		- 8	•		. 20	
				72	413	4, 10	

sa 8.5

i	1971 SAPEROL BOX		oc 200	2700E	era.				
		951			151			11	
-1 -1.	14		E (33)	-;:du -≙:\	44	У.	的数 表注	ta (+)	<u></u>
H.		114		i	.13			LP.	
H2		25			91			501	
ы	ļ	76			w			501	
N:		4=8			-! i			1).	
MIT 11	R	± 1.		9	709	: 11	ь.	64	F
X1.9	18	407	1.45		134	450	65	735	2.65
Jen:	12	267	2.71	Ξ.	(S)	×.2	53	7-1	Ka j
3.11.4	1.	701	4.70	22	15%	. 45	105	32	5, 24
5.5 0.1	15	781	0.03	16	121	1.23	IL.	ve.	4.91
▼ ! T !	-:	NA:	± 19	÷0	8.5	1, 26	108	W	5.01
9.50.5	٦.	J:5	1.51	:	887	1.74	121	15	1.54
V:114	- "3	0.2	3.2	15	: 6	1.15	151	904	0.≄5
Wil.	.73	:".	. 25	67	4.0	+ 87	195	777	4.6
250.0	- 11	Re	5,29	٠,,	٠;	+ 4	17.	744	× 36
8000	73	11.	51	ν.	94	- 10	307	309	tè
0.000	٠,-	24	5 3	41	21.	1.5		65.	5.47
F 111	${\mathcal O}$	411	2.4	ij	4.	ΣH	Y	4.5	
$P \cdot P \circ$	Æ	ré3	6 X	:.	W.	8.12	16	415	7.5
ы.в.	æ	124	4.7	٠.	:":	2.72	.11	4	231
91:04	4	<b>a</b> ×		ь	:-		1	440	3.40

Q1.16

			5-3427.	والعود		!
1	l	165			$\{1\}_{i=1}^m$	
٠. ٠	70 to 70 do	₩., :X.,	.0 .80	95 45	<b>3</b> 00	4.
4.1		'11			100	
ክር		481			451	
6.5	•	735			HI	
F 1		1.54			<b>21</b> 1	
K 1.5	145	770	2.79	III	200	- 8 (
B 15	LH:	656	3.80	(6)	331	1.72
W. 74	ÞΞ	F ·II	. 121	E	W <sub>1</sub>	1 :2
HILLS	148		4,39	151	• •	- 111
932.	182	2.17	. 11	. 61	****	1.17
9.80	80	1.0		150	.4	1.00
300	19	::	. г	157	721	1.88
1986	;*	90	1, 57	158	174	5.6.
'AVDI	.22	465	2. 14	13	1	1.20
40.00	76	501	1.08	10	40	1. 58
1:0.	,	704	8.05	-7	168	12
$A_i \subseteq B_i \in$	25	12-	2.5	.=	4.7	y 16
530.00	. 25	5.8	٠٠	.3	92	1. 12
8355	48		1.7		+78	1.00
F 1 7.7	153	V*	7:3	- 13	5.5	2, 31
F 1.14	11	-31	5.0%	174	Egg	4.37

. ..

			Det.				
			N ma	Egit 25			
I		<b>PS</b> 31			56007		
i . = i	ii i	ur j.	$\beta_{ar}$	1176 201	%. [A]	<u></u>	
5		90.0			-92		
2.5		W.			7.3		
Wil		6			-4		•
Mar.		85			4:2		:
21.31	114	.in		.12	171	.2-	!
90.00	406	181	1.76	762	-72	.67	
310.29	\$71	40%	5, 0,	487	\$15	15	
V = V	1.2	403	4.03	365	1.2	2.86	
3/10/1	5. 1	×	0.00	1987	2.2	U. 18	
W 3 7 8	2.4	Br.	• •	95)	3.4	16	
X 2 (2.3)	275	200	•	296	742	29	
2.390	1.4	137	1.15	.90	361	2.34	
V 5 7 I	1.7	811	25.14	50-	::•	1.12	
87.03	276	at:	17	494	:72	7,18	
5400	1.4	.c;		.1€	3.4	":-	ļ
2000	3.6	Æ.	Let	.86	3	. 17	ı
7 : 71	34	27	1.10	197	8.0	u, i s	•
$-1.5 \times 10.5$	512	267	F	196	2.7	0.43	
12.00	1.1	d <sub>11</sub>		(8)	124	.79	
2.2	111	.11	10	101	28 1	. :::	
i							

		πž	.47			73	10:	
		, 47	Tata mag	kr.:	:: '	;	Frity **	lpi j
	7 /		815.				(B) (C)	
		./7: 8 7	977	19 270 ———————————————————————————————————		PARE TOTAL	, q;	Q. Li
			291		1		an ·	
	42	!	427		10		स ∙	
	41	•	775		18		67 (	
	Ŧ.		712		14		400	
	JC)	ud	513	2+	1 L	423	46	0.77
	41.0	100	146	36.	4.71	47	441	3.9
	s III i	. 14	155	11	4072	äs.	467	9.31
	FIEL	:15	786	6.45	4 14	24	:41	0.74
	F:Dr	416	: 5	4,88	4701	<i>::-</i>	:::	30.5
	F312	417	i.	0.50	4, 72	77.5	243	0.1
i	E SEG	415	415	1.51	46.65	7.1	177	7.72
١	P. IN	41.	7.75	ж .	M- E	-7	1.4	1.
١	2 iL:	42	05	0.25	W -1	777	:11	- b
١	100	4	412	6.5.	1.49	12.1	107	7.6
١	11.2	144	427	F 15	L. IC.	177	1.5	1.94
ı	4,174	4.1	404	1.71	Kith	40 •	102	V de
	10.	404	\$70	6.2	k- 11	110	512	1.65
	40.0	427	557	2.55	Mf6	1.	384	! E:
	1111	11	** :	1.10	5-1	12	012	18.
	N1	27	797	1.76	N-M	11	Arc	11.

 $\pi(z), \infty(\cdot)$ bgs1-021-5 pm/0 SACO AND  $2 + b = \frac{4 \cdot 5 \cdot 1}{4 \cdot 5 \cdot 1} \cdot \frac{1 \cdot 5}{1 \cdot 5} \cdot \frac{4 \cdot 5}{1 \cdot 5} \cdot \frac{1 \cdot 5}{1 \cdot$ 236 я. 1005 N2 1,0 91 185 · H · F11. -12 Military 177 BEV 1812B 122 Ber 1827 B20 KC Hills of a larger of the second Bolton Na 11 (42 da NA 528 51 6) H104 35 50 655 655 658 657 ...21 502 681 746 #2500 (50 MX AND 15 AUG 128 EU 04 E10 #41 5 755 41 140 PF 500 170 NV 250 270 2080 P 30 Co. 100 912 1178 20 AM 812 M 8 D 4 1.54 400 :. . 1.0 4  $1,2\} = 2 \left( \epsilon - 2\Omega \right) = 3 \cdot 3$ 205 P. 559 508 1.00 NO NO 1.00 SET 150 SET | X | D | | 199 | 211 | | 21.0 | 221 | 325 | 327 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 2.0 | 2.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0 | 3.0

				::	5 (3)				
	[ ]	, II	1.3	1	فاخامر	·1.:	1.	A. 185	asai, -
		Last			P. 1	•		143	
9- L	2.74 2.5	r <sub>V</sub> ;	n B	) (F	<u>(%)</u>	ď.	32	William R-	<u>.</u>
41		14.			948			1945	:
न :		$f_{\rm e,1}$			7			i 11	i
4		Fee			15			135	
41		422			480			80	ļ
7120	2:1	Q.	: 29	$\mathcal{C}1$	==-	4.5	25.	599	e- [
RIPE	7.6	$\mathbf{O}^{r}$	0.00	2.5	73	1.72	:53	529	1.77
P ( 5)		167	100	::	-11	1.4	47	V.	3.34
E :4	:**	F 21	2.76	+ 4	71	::	25	794	55
P: r	٠.	. 8	120		l'e	3.87	on:	170	5.77
27.65	-7"	500	16	:45	736	7.7	2.5	100	- 57
0202	.1_	2.4	0.41	+17	718	0.15	445	:.4	:. e1
1111	13-	-7	6.51	s ja	$\varkappa$	.0.99	Ð.	:35	21 -
200	-12	а.	2%	240	24	5.08	23-	181	5. 1
910:	254	4.	500	2E)	.26	6.57	.9~	4.	
213 P.9	297	6.3	7.72	5E1	rt	55.51	257	IC.	1.2
43.74	740	9.3	1.5	252	••	2.35	يويا	494	5 °
He zi	gy/	æ	0.8	751	,72	5, 9	336	10	1.18
per sis	: 8	SR	5.9	774	143	7.96	38		1.0
F7.00	1.94	:47	31,	50	944	0.09	371	2.5	1.79
9754	1.5	40)	-:-	ž.a.	::	24	742	***	1.9
·									

				Фs	104				
				_	tis m	71.0			
		.880		_	og ef e			Sit 4	
/	\$\$	ur. Titi		7/4 #	W <sub>res</sub> ().	7 390	6.0	(K)	t. Proj
И.		1964		İ	- :			63	
WY		q.			ar.			z.1	
м.		195			374			: 5	
: #/	İ	·Ic			4. '			14	
ать	277	.50	. 15	di.	J12	1.60	ы	380	1.78
9107		•==	٠,	367	217	0.04	ο.	75	1,040
9100		9.1	-,		3>	1.15	57	KC	. %
of LL -	V-1	160	1.72	242	417	1.49	1.4	41.	.77-
₹\$£.	277	129	$(I_{\alpha}, \lambda)$	224	14	$n_{\rm c} \approx$	٠	94	7.5
اجتدوا	278	:П	0.73	Ω.	374	6, 2	Ms	5	. 81
-530¢	2%	6.5	1.72	10	73	. 5	٦٠.	71	. 30
92.00	24	- 1	1	13%	5**	10	ч.	367	У
450.	2:1	175	1, 25	· x,	.ro	1:	.0.	100	CUT
4.5 (4)	2.1	:-:	1	140	: "*	$C\mathfrak{F}$	áss	500	5.45
4.5%	80	12	: :	14	۷.	: "	a r		4-
4.1.0	37	36	0	DX.	(4)	. K	9,0	2.8	R m
$A \leq \lambda T$	<r	198	≟:	:1	i.	E ;	an	201	.15
30.00	500	.2	. •	54	25:	el.	3.8	234	1,00
22.0018	887	21:	1	90	861	2.60	::	247	5.57
2.1124	-7-	9.1	9.3	3.1	27.	0.0	707	es.	
I									

£22 (1.5)

		ji Piljer	iz		N891/3	6.19		11.24%	
		53		:	Kas			893	
¦	# €) Ger	**	~41	수수 주 <u>부</u>	ik:	1. 46)	* 11 #	<b>F</b>	, <del>()</del>
w		: 85			R			1156	
9.5		445			322			205	
9.2		M 5			53			F23	
V v		FS			ne.			455	
v .	281	:: '		277	62	2 ±	200	53%	8.50
9 72	121	21	•	278	25	ōΧ	251	4.6	7.M
$P^{\star}: \P$	10	Ξ.	6.97	:25	4.7	8 n	2 ::	55 -	1.15
d (a	49	- 0	19 (6)	5.9	70	5.2	17	<b>E</b> :7	101
41.00	3%	483	2.48	0	:.	:	L/S	570	20
31.02	£Y.	271	5.74	125	: 0	4	LF	2:	1.94
$A:\mathfrak{I}\mathfrak{F}$	۲:	527	5.5	- 1	21	1.1	46	2 .	1.53
allow.	52	1.5	7.76	5.4	OC	75	Ж.	400	$\leq \pi$
4 21	٠.	10	0.00	4.	1.0	1 "	٠.	513	9.85
$\lambda = \{1\}$	22	٠:	11.	2;	٠,	1.52	es.	30	1.13
$k \geq 2 \gamma$	-2	44	. *5	347	250	2.65	7.9	96	512
Page 1	.22	19	1	4<	80	s Fr	dis	35	2.34
L	731	4	n. 23	749	28	1.1	1.0	3:	0.35
1201	z)r	778		473	2.4	1. 2.	125	.5	1.90
9.00	25%	3.3	%	:.1	x.	9, 27	!":	550	10
W- 10	39-	:=-	2.6	Sir	717	2.51	; <b></b> ,	72	

#### 大性 1、"克森堡[[1] 克莱斯]

・多くを、エフィーケーをようか。このアルチをおり、 54回 2)パネッとは そうが、モルスながらは、ストルーはアルド・ローンと、はまたに対点を打り向け

# 11、1日,新大利着东

リースをもないからである。マスは、これのです。スはは、またいのではない。 のは、フェースをは、またが強性によって「からます」と、スロースをはなる。 スロースの して、(1911) ・ スロをはないを対象をは、(111) で、インス・スロースの しょうしょう。 スターの第2年に、は、8月では、アウェン・東方では、マールのはは、 をおれば、第一、直接では、10位かりもなりが、全部を関して上面で、中央 メンシ、スロースのは対策では、10位かりをなりが、全部を関して上面で、4年 ルス・スロースのは、2001 で、10点の「からは、4時間、4時間、2001年 では、2011年のは、1001年 によっ、マーはど、4時間、4時間、2001年 ではない、スロースをは、2011年、1001年では、2011年のでは、2011年によった。 ではないののでは、2011年によって、1001年によっては、2011年によった。 マースで、ファイルのでは、2011年には、2011年によっては、2011年によっには、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっには、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、2011年によっては、20

・ - 4 - パッピタングロック・100 概念

を終さられない。ではありませった。 マラーマット・・・・ 例がから、下側のから 元に 作す こうしょ こうしょう おけっちょう マル・マクラック はんしょう かん おかっえ こう ながけるが、このは、スキロ (一分の 11 では 17 できます) なは 1 、 ・ いっちょ トース おは (17 できょう 一分の 12 では 17 できます) なは 1 、 ・ いっちょ トース おは (17 できょう 17 では 17 では 17 では、 17 では

・ 注意のは関す。 思かれ、は、、この、お子を飲け、気に放射した意味的 ままで表面が、重要を入っ、バックを洗ります。 からまっした。 スッケーノです フルー 「子・の信息のである」ので多か。 っとかって「例するは、これをある。 の「つけった」 ・ の手がなったが、 はばいませんだけ、 これを確かます。 ・ ・ 一 の「気になった」とは、 一 の では、 これを では、 これを ではない。 な の では、 の にないないないないないないでは、 では、 ではないない。 か を がくている。 ついまとうのようのから、 はずれないないないが、 は ・ の はないので、 かが、 ・ の によりにないないないないが、 は ・ の が でいるです。 。 、 にあり ・ 、 し に 常れなが、 がらたる ・ できまないること。

#### 1. テーテ、10 . . . . NU-10<u>22</u> .

タイ乗りたいという インダン・スタッション、スロッチ 以降の マン・イン・カザン のつかえ 4 = 1000 円

$$\begin{split} & + (a + b + b) + (a + b + b + b + b) + (a + b) + (a + b + b) + (a +$$

# F NA

■MECONSTRUCT ACCRETE ACCOUNT ACCOUNTS TO MECONSTRUCT ACCOUNTS TO MECONSTRUCT ACCOUNTS ACCO

# $c_{\rm c} \approx 46 \pm 2.7$

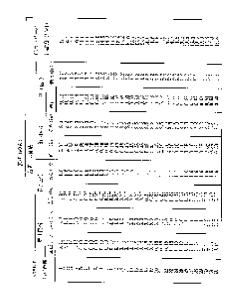
重素があります。これでは、またでは、食物で変更を、くれがは、はずれては、 ないではないも、これでは、これでは、生ましてはない。 というでき、原理で ようでははまずがです。 これでは、1700年によれば単元が2000年では、かないを はながらでは、これでは、1700年によれば単元が2000年では、1700年では、 では、700年では、1700年

表と「1名、2007~14**0代**社

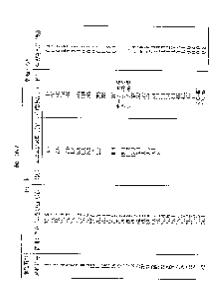
Γ	:		Ф. <b>Д</b> Қ	<b>5</b> 5	e <del>d</del> .	10.7	<b>~</b> £	1.35
ľ	- ( .	I. i labo		730	-\u00e44     r- 5			417:
							<u> </u>	-
į		11. 2. \$281	A SE VAL.	28.4	H.I	( 12	7 93	1155

- a:可谓critery Work (Associated Lieb of Midagong 医电压器 )。
- All soften School (1994) And All soften School (1994) And All soften School (1994)
- Remarks of the second second second second

								-				
	į	 두		اخترا	4	<u>20</u> 09	1538	7990 7775	1027C	<u>éBH</u>	85	
	* College	FY	9	<u>≙</u> 53	:=:	air.	 7589	·	.4954	بققة	 (5) T	
	0.00	E 100	ءِ	:-		ûGF	-	502	:			2002
		2 =	¥	94.8. 2.00	: :2:: : 0::	9595 970-0	7.7.7.30	 (1152) 	<u>ئۇۋۇ</u>	<u> 4999</u>	9.56	(822
#0000000000000000000000000000000000000		100	115				0-		·==~R			
	4		600	<b>12</b> 1:::	::.	<u>-</u>		20-2-7		- >,4 :	) #2	a Trott
	100 mm of 100 mm	1,110		22)	 192	గర్ క్రేక్ల్	3349 2269				1233	หรับรับ
	Í	7 1 972		N N 9	/ p = 0		0 h = 1,5 2 k = 1,5 2 k + 6 2 k + 6 2 k + 6	1000 1000 1000				/ <u>CCC</u> 4
				111	i - <u>j</u>	100°			: : : : <u>:</u>	7	33.	
	-	4 1	:	• •		2. HB	m. 11.4.	A.BI -	^#. J	·:	: .: сү	Verti 6



		FT . ( )	Steady	Electrical National Englishment Co. 100 (100 (100 (100 (100 (100 (100 (100
		1 ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) ( ) (	Among	Lawrence Color Col
		PI-VIA	111111111111111111111111111111111111111	
1,000,000	•		14.11.11	STOCKER AND AND AND AND AND AND AND AND AND AND
ü		¥ - 3 - 7	DO 10	4557667788222222222222224444446666 
		3 9 15	(1991)	**************************************
			4.1	Powier Red ( 1.3 ( 10.000 ) 17 ( 17 ( 17 ( 17 ( 17 ( 17 ( 17 ( 17
		7		



「(本)」(344) (178) (53) できりって (43を112を12を できるもった。 と、一点をサーバ (173)を20 (本) (40) (一般がありできるいるとのは発電するとれる。

・最高的があった。そのまたは、レンフェックを含めた。最多で、スペラーでも そのシェンを表現性があり、ペップがは12回では、「このは、できないが「かん 200。 本来はのながしまません。 ママック会議があると、5場を目れては、 ・ボンスト、スペックストンの「prospectiveのようとはず」と、それでしまる のではないエストでスティックを表し、表現のではできない。

无一起,一个认为他们并实现了。\$P\$会理图查起时,这块数别特别,是开始地

#### MOARM

別り、いてアナーバッナが1977年を開い、

÷	1 /42 T	C- 54
1	C.781	279 - 824
+	化四倍类	351.3
÷	- P! #\$t	539 > 400
٠.	$\lambda_i \otimes \mathcal{C}^{k}$	3 [4
	2.6(7)	$t \approx 20$
•	a morphis	5~ 41
÷	$\pi(\mathfrak{p}_{X},\mathfrak{q}_{x})$	4.5 - 60
٠	火撃減が	$47 \pm 4.6$
	<b>工造机设备</b>	rder

# 

 $(\Delta_{\rm eff}) = \Delta T / (\Delta T + \Omega_{\rm eff}) + \Delta_{\rm eff} / (\Delta_{\rm eff}) + \Delta_{\rm eff} / (\Delta_{\rm eff})$ 

(교환기) ▲ 대학(대 973-120 ■ 학자(대학대) 급 학자(대학대) 급 학자(대학대) 급 학자(대학대)

x Book at the second considered (12%) is

ア 1 (11中) アーベッチの対象が、10円。

 $-1.4500~\mathrm{M}_\odot$  Purefront Subsection

● 17%(23 - 17 ■ 78(240(21) - 17

 $\Delta 14^{-1}$  for  $z \in \mathbb{R}^{n}$  . The SEMS with 1 and

 $\ell_{i}(M_{i}, \delta; d, J + c, \delta, \gamma, \ell_{i}, \delta, \ell_{i})$ 

● 対象対象 ※※15 ■ ・第75%以 ○ 対象が ● ・275%以 ○ 対象が ○ ・275%の対対・ ○ ・275% ● ・

 $\underline{\mathbf{M}}(\mathfrak{F}) = \mathfrak{M}(\mathfrak{F}) \otimes \mathfrak{F} \otimes \mathfrak{F} + \mathcal{A}(\mathfrak{F}) \otimes \mathfrak{F} \otimes$ 

THAT ITAL SOLVEN IN A SECTION.

★ 3 開製車 1 × 46
 ★ 3 入時の 2 次)

CHANGED ASSESSED FOR

- P. CaCH 115 -281
- A 704 7 2.75 U
- C 95.06041 65.4816 **\*8917.0**TH
- 6 1,38(4 4) 67
- STAGEN SERVICE
- ≥ 28940-1 (100-22).
- 4 1 € 1 5 E.Φ ≥

# 14 S. M. Z.K.Z. — Norwick Delighted ANNOUNCE

19334 No. 1197 H. 5

- M55.63 575 550
- 本美美の世間 400~
- (1) 利用でも、サラットの
- 1 5500000
- 4. 图象设备 20 miles
- A 人名英贝尔德里尔
- → 17.9 ≤ 5.1 m.
- ▲ TEXACTOR

## 1. 付金また、ベックなな影響をつめる。 participant and the contribution

- 100Hall by 15.
  - ▼\$47,75000

# **可能 (外とスタールデスの分表表で、特点** 599. # - # - 7 (50) . Balan

≥ 090 n = 2

■ 4-55% 25-32

よう、打きなグールできたが繁殖を上れた。

COMMUNICATION  $\phi = \phi(1/2) \phi(1/2) (1/2) \cos(4\phi^2)$ 

● · / 医改生 - 12···3 ■ A# 30 2000

区 人 海野生素出版(含)主義(4)。 人 (4)第二

1.55mm (4.5位 発生では3.55mm) カガタ スクセド 育までも1.55mm とうしょう

İ ∎ KENe er en 二十二年代の統領 2

**阿尔二克斯里尼亚克**斯克尔克尔克克克斯克克克克

15号 - のの前台で1001 × 1000 7年 - 1の問題する(1000 1777)。

 ■ P(\*) (\*) (\*) (\*) (\*) \*\* = 500, % · (n) ≥

本制、金銭化会工度と水大くけ、この対象。

(a.ii) 300 **年間** (1.57) (1.17) ローフェッシック (24.4.8) (1.17) (2.17)

● Mawiff 107+14 L KAMPAZA Z

# タシー 各性の物と重け4.8 できゃけ、アニックセンドが中間中の「メンドの書 Tend (000, 200 ) 6 x 1 % (3 x 5 2 1 7 (3 trein theep. ).

- 事 「4条用にが年数」が
- → 大会の内が歴史を行った。
- ± 8690 40 00

国職(241、カーボングラッティング、とこ科集ももうだけを頂いステーバッチ ことでの 地名第二世五郎 ハイス しゃくまめておれている 編一

- ★ 3.3.36 (4a) > 4.1
- SAMOSAMO
- $\mathcal{L} = \{\{1, \{0, 1, \dots, k\}\} \mid k \in \mathbb{N}\}$
- ラー・カーディスト、キャントのお洗さ時を含むするほうへん。トッキットを 本芸術・個名前に指すした。 ここじょご (1775年) (q.
  - 対策機能 en ess
  - 24.03.66
  - C. Ne Will in the
  - \_ 8/2/1/60/2607 \*\* \$ 50 90**3**% | 470 -406
  - 医贫其心囊组织
  - Premior 1991 A
  - 国际公司 (2013)

The configuration of the property of the profile  ${\bf v}$  , which is the configuration of the

, which is equivalent to  $(\mathbf{H}^{\bullet}_{\mathrm{coll}})$  , the stable  $(1, \dots, n)$  . The 三記号(1) マッコ最終的(3)を、100~はくなったという商品を含まれた - 大火武司後で軍の事であったとは、連門客とフログルンからも、 1.35kとアッツ  $E=S_{1}\cap H$  , which will be the state of E . For E with a restriction of であり、ボンブンフ、ルド3 マンマ会議は高く長年 (1952年3月2日) 2000年3月2  $\omega_{\rm B} = 0.85$  , in the position with  $\omega_{\rm B} = 0.03$  keV is Main dT $\frac{1}{2} \operatorname{ch} \operatorname{AOL} + \operatorname{Del} \operatorname{Coll$ 一、まりは、このは「はいないたけ」動作した素をしならられ、正常における様 with the postulations of the (p,q) , (p,q) , (p,q) , and (q,q)的情绪,就更为什么多点,是他的心,那<sub>60</sub>,是100毫美元的不多态度的态度性。 置れても高端性と呼ばれませる。 $W_{\rm tot}$  (2003年) - 1181年 とうろける  $\omega$ - 中で行うと「緊急を受け、「から」ださらいカツを表記の場所し、後々なさない。 is a discretization of the Court of the contract of the court of the あたりまちしゃ、これ組まりは吹きさらべるなけれた。人間を「心気起退性のシー 表表示。 E. 网络对应的复数形式 "由你来自己的时候心,我们还没有什么点。"  $-9.44\pm0.000\,\mathrm{mag}(0.0000)\,\mathrm{figure}\,\mathrm{figur$ 

Landan and relation (All Transport of the All Tran スカーベースケースドロモリアロス (多手のはや) おこかこのじ はばの かり - ハランドス・アスションになって発力する方式技術をより、他のでは問題できた。 TLD 19: 5 Web こっちゃ (回)は、カーバンドが、そのかが(佐藤隆県 th - KYO, I sa (直見管体 Dath NOTE LIPETED Web ひままばし)  $((\phi, \mathfrak{m}_{1} \mathbf{h}_{1})^{*} \mathbf{f}_{2})_{ij} \otimes \mathbb{Z}_{2$  $\lambda B = \mathbf{E} \delta A \mathbf{e}_{\lambda}$  中語。なべは本たな、 $\mathbf{E} \delta \mathbf{e}_{\lambda} \mathbf{e}_{\lambda}$  この日本を使えないのなり  $\lambda_{\rm B}$  ) and  $\lambda_{\rm B}$  is a first partial of the property of the property of the  $\lambda_{\rm B}$ たつくの味でした。(P.5号)、 インタ、本を色のではなかってくての自動!  $s^{\alpha}f^{\alpha}(s)\approx h^{\alpha}f^{\alpha}(w) + s^{\alpha}(s)^{-\alpha}$  . The field of the field provided with いまくにもで、ジェッと「は、まち」」に真理者集は、決数とはも直理なり資料

 $h(x_0) + h(x_0) = \lambda + h(x_0) + h(x_0) + h(x_0)$ 

 $-M_{\rm min} = 2.100 \pm 0.001 \, (4.07) \, {\rm Mpc}^{-10} \, . \label{eq:min}$ 

(事務) から、さいだいつきつかき。

- 88、・ 150, 3(N 105 ★146) 名前:

このではないというです。 このは、100円 とで は このがあります。 一般のであります。 100円 であって、 100円 であ

### を振り、さいたい、とき、前部がたけ続き、はつ、シスを育っていることで行か。 ある

 $\{\mu(g): g(g) \in \mathcal{F}: (f) = g(g), g(g)$ 

因为,你,而是100%年度的第三人称:100%,为第五十五次面的"多个"。 うんしゅう アラック・グラグ 10年 海中では100円 、1 はりかまったでは、システィン・  $r_{\rm SCS}\sim c\,k(\pi)\,r_{\rm SCS}\,r_{\rm SCS}\,r_{\rm SCS}$  国数  $r_{\rm SCS}$  Regarded SCS  $r_{\rm SCS}$ 後の中には特別では40年で、1年では、5年に5月ではMicro Mi Light Place (Transport AMERICA) (Market America) (America) (Market America) alpha_{\rm ph}$  . Since the state of the first state of the state of the M構造といった「治治力で、主義なったからのか」で、かりょうの行為が確かでする。 えきこを(2.1を)してつち、こうらか(3)は、これがも不等(はしょう) ときんし (v,v) 着 ( 0 ) (v,v) ( 0 ) (v,v) ( ) . ( ・おも、東西は10年をよった。春年(1420年)、名は100年(127)。 デ POWEREST LINES OF THE WORLD AND THE CONTRACTORS AND  $\sigma((c)) + (c) \sigma(b)$  ,  $\sigma(b) \in V$  , which is the Country of the C $\mathcal{F}_{i}$  , 解析  $\phi_{i}$  = 1975 5 5 5 5 5 万  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$  ,  $\phi_{i}$ たまで、ディンとは1980年の大学で、2012年の1977年の最後体が、現代で配信室。 23 + i 文度  $\alpha$  的分析的  $\alpha$  ,这是一概点  $\alpha$  的复数  $\alpha$  的复数  $\alpha$  的复数  $\alpha$ ①国際(  $(x_1,x_2,x_3)$  ) (2.7) しょうかい アストゥーを含むの いんごうきゅう F. B.J. V思(たみ)

, where  $\delta$  and  $\delta \approx 10^{6} \times 46 \times 30^{6}$ 

1 (4 (8 (4)))

Holder Court Court of Mark 19 (19 Mark)

Light Participation (Magnation (Magnation ) A Company (A Magnation ) A Theory (A Magnation ) A Theory (A Magnation ) A Company (A Magnation ) A

で一致の関連を担づしていません。これない、「本語です」、「記述された を動物性を進展しなかった。これは、「名物では、これである。ためのは、。 を1974年1月1日 1984年 その新聞の会話では、最初では、「おけった」。「記述 が、「き」というには、またのは対し会話では、自然ですがしまった。これでは、 できる。ないは、「はない」となった。「というない」というできない。これでは、 ないがは、かないのは、「はない」とは、「知り、これで「知り」 ないがは、かないのは、「なっ」とはない。知り、これで「知り」 ないがある。「記述のない」となった。「なったいではない」というで、「一般は でき、これでいるはないない。たった、「なっない情報」とは、いかで、これを して、まるとが行から、

Todalo d

本書の経験的のであった情報で、これであるためを「はていって、それられる。 ※、他は、はい場合では、ではいれたのではインスと、、、、最小はなまます。 また、はなって、からで、本質のメール、デールでするとうのは重要の実践して、 他はないないでは、も何を入ればは、そのからでは、そのは最近のよれにあってもので はは、たいかもの最終に大きなどの実施にありませた。である。 はは、たいかもの最終に大きなどの実施にありませた。である。 はは、たいかもの最終に大きなどの実施にありませた。である。ののである。 たったが、関係は、、、、あいたのではないでは、内でいる。ののである。 たったがはないの存むは対象が、ままままでは、まずでは、までものである。 そってはないを含まれば、最近を表現になって、まずでは、まずでは、またが、 とったが、あるに、これは、これが同様がはもの最にはないであるという。 まずるとしていませないである。「私のである」となって、またが、これでは、これでは、はないのである。」とないでは、またが、これではないである。「私のである」となっている。

B. 10 62 00 0000.

3 Q+1 0 1 2

The Company of the State of the

Telegram (Agric - Eddorfus) - Hit (Aris ) (X 7 年 - 19) ・ Sugge (Agric - Agric ) - 新見され、 Proposition (Agric - Agric  $\theta$  of Post 17  $\theta$  ,  $\theta$  An A (0.0  $\star$  10) is a minimum with a 2 degree  $\alpha$  . (大川はボービュリ、門を集まり記載した。 なるはんていた

三指導、カーバン・ライトの20 あたるおもます。 1737年発行の選択した配 DO PT 000×002×000 ついかの単元をいる。本は、東ラーを含いた。  $A(t) \in \mathbb{R}^{n} \times \mathbb{R}^{n}$  , for  $A(2n) = A(3n) \in \mathbb{R}^{n}$  , where A(n) = A(n) + A(n) = A(n)グランス・フェイ 記者 4名と「自文を紹仁だ」(うかね)をよく言意に作れて  $0.377\pm0.06829 \times 7.071, \ \Delta_{\rm c}(h)_{\rm c} \pi_{\rm c} + 5 + 3.080 \times 1800 \times 27.089)$ 

# Water FINANCE SAME

WEST OF CHARLES THE PROPERTY

 $\exp(\hat{f}_{n}^{*}(X)) \leq \exp(\hat{f}_{n}^{*}(X)) + \exp(\hat{f}_$ a for Particular A.A. (株式 - 株式 2.8 mm) ままって下す トレオータフ (株式連合 Let  $_{\rm th}$  and  $_{\rm th}$  and  $_{\rm th}$  and  $_{\rm th}$  and  $_{\rm th}$  and  $_{\rm th}$  $(x^*/1)$  意味もないのは、1 回的す。 $x_* + \beta_*$  オップをModel (25) オサガ (25) Mag. (東京 400年) 「京港東京市発明本ではます。 (東京の道、 自己発展者できる So in a 50 d fits of a Cross-SeV (  $\sigma_{\rm t}$  ). Fig. (  $\sigma_{\rm t}$  ) is the constant a 9355は 350 となりするト製鋼の設計と対象の方針のカンパイト機体を行いある。 立な、下記の表別の目を、本名所のよう業を(Lindonのチェースタッと もんか) いうのす者が最初に発生される。このは、あっては、職職を成立に対し、確認に BOOKERSON OF CONTRACTORS OF STREET 4000 利用して ひかに投すている。これのとは、火に撃撃しているで、はた大名 ようを考えれていまいが、 かっかっかいとれる数の、発力会におってもの 水道(建築して)をしたなります。

エナストラーをいったいクログをおける にくて書きたる

W. 1669.33554.

 $\frac{1}{2} U(\tau), \, 0.6881\% + 60 \, \mathrm{cm} < 1.181\% + 62 \, \mathrm{cm}$ 

 $\partial_{\theta}(t, t, t, t) = \rho(t, t^2 - 2.5) \times 10^{11} d_{\rm eff} = 0.00 d_{\rm eff} d_{\rm eff} = 1.00 d_{\rm eff}$ 三重な形態を含まれます。作品におり返えます。 使いるさいそうりょう 大気楽団に Soliky Book (Advillar, Machill.), it essents that he will be  $-\alpha + 2$ 登録体を支援したが、で、可が終め、メージンフェッス system ( Min 2)負 さらい Mana はいいした の間をでは 8時の二年だらい、名 app は、 もごうたい いたい 1、先生がような質されてきた手造り合格のことも、あっぱった。 ターボ ンプラック: Set Mart 300 を含意してもたいではれるだんではある。これを、  $(\hat{x}, \hat{x}) \in \mathbb{R}^{d_{1}}$  また記念をは、本書帳の説明 いっぱん  $(\hat{x}, \hat{x})$  . A proof of  $\hat{x}$ **通さらいたられている。 4、毎日まらは取べりますが、ちょうと、塩料主会の力を** 音 (4) に関われる ( $\hat{G}$  )  $\hat{G}$  (  $\hat{G}$  )  $\hat{G}$ です。GG よりはない。横れている。このできる。代にど思したように、と楽場 その(間のあた。おもった。オングラークのコウェスとは、**自見好**しいもっとい**大** うく時代 しかいるかきく にんご

表記:カーキン・スークFM AL ME MOSEL 大名英語で発言する経過、インド marginal and the

ar di	u han q 19			1792 m (1	70% (* s	<u></u>
	2.6 2.6 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1 2.1	是 化氯基酚 化水油 医氯化二甲基酚 医克勒氏管 医克勒氏管 医克勒氏管 医克勒氏管 医克勒氏管	Military (1997)	(X) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A	400 SI 163 SI 100 SI 10	57. 0 57. 0 57. 0 77. 1 57. 1 57. 1 2 7. 1 2 7. 1
· 保证 2 Man 5 Man 1 D S 1 Man 4 医制士 (对称 )	- 1,20 以 23 以 23 以 23 以 24 <b>御</b> しま <b>4</b> 。	表 (in 光 (g) 31,50 記 (i) 元 (g) 	(1) (1) (2) (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4	(6) (4) (2) (6) (6) (5) (5) (5) (5) (5)	# 1	101 101 101 101 101 102 103 103 103 103 103 103 103 103 103 103
# 100	TO SECONDO COMO CON	2003 1 5 mm 1 5 mm 2 mm 2 mm 2 mm 1 5 mm 1 5 mm 2 mm 2	1		0 127 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138 0 138	

| 15日 (1.16)|| 8 x 2 (1.15)|| April 101 (1.06)|2 (1.41)|| お食、草が今甘、まいり 表現の主義の時代の発展の大変でも連続性は2種で、それの、PCでは、KTCーの  $g_{\rm s}$  カール・シュータ  $M_{\rm sol}$  ,  $\Gamma_{\rm sol}$   $\Gamma$  (40) 他 R ら  $\Gamma$  ) 本作用のじてた エッストラー お客か ラッチ、光素質性が、モラなは血性は大変なは、発症は、2015を影響です。 とは (10 ) 10 ごうてんで、トロルタフラック Trub Ben (20) きまり おんち 手押り

表題、4、 本、2年 / Charles to Land reversion () (数量的单数 Parkers AND STREET AND STREET

1					1 T 1 N	— <sub>#</sub>
N.7781   1	- 462 1. 1- 1-4 1 1 1	154	(99 (56.)	$-\frac{-0.9}{960}$	ラスし姓の 神の人	250
			1,60	191	411.7	
~5 (0)	1.3.3	56.0	107.7	1:5 1	3815 D	15
a≨ iii	11.11	57.2	her. J	1776.3	40:4.0	603
+ <u>9</u> H;	119	16.3	16.0	16.1.1	38, 6, 0	99
15 £ 111	967	14.4 G	98.0 36.0	1828. T	51.00 4.100	2; 3):
15 6 1B	110	ä	SiX.	nā.)	290 0	ή";
z,# 18	0.7	77.4	100	18203	4115.4	- 32
i i i i i		17.5	2.6	1.363	41 ± 6 421 ± 0 421 ± 0	- 25 L
204 (1) 50 <del>5</del> (4)	14. •	12.1	250.2	1000	425 : 0	35 !
7.8 1 1	15.5	Pr B	480.0	125%	421.0	700
	115 / 11.	10.4	FIGURE 1	REAL C	410) 415)	5.2
전을 1.1 전문 1.1	ii.	74.1	11	135	1200.0	- 21
1 F 130		C i	200.0	1744	2011	3.0
<b>≠</b> ■ 100	.01 06.0	0.4	22: F	Plant 1	1.60.3	7.44
98 9	IL.	13.5	20C. C	1341.0	48)( ) (0.1.1	<u>[-:</u>
医腹侧丛	5.3	1	1.0	18.1		503
1.5				104	* 41 2	
	— . — . #1 ★ - FA	**	ьЮ	et5	,=+0	3-7
		**	ьЮ	, E.S.		1.7 6 Ot
Xp-1	##1## B# 357	# # # # . * . * . * . * . * . *	и 16 - К	JES IZ	,e.e. 2 1 %	1.7 6 Ot
Xp-1	William Ba	**	. Иб 40 — Уд 41 — Ф	JES (7 JB) 24	10 8 1 0 8 1 0 8 4	1.7 6 Ot 8 8
20 - 1 - 2 - 2 - 2 - 2 - 2 - 2 - 2 - 2 - 2	##14 - 96	# 1.4.7 N	#16 40 1g a a a	JES (2) (3) (4) (7)	(#18) #135   0.81   0.84   0.15	\$ 05 \$ 05 \$ 85
表の・1 - 2 のか - 1 のか - 1 のか - 1 のか - 1	#14 - 安 保み 3元21 (株) C (株) C (株) C (株) C	### 	#16 40 % d d d	.65 .8 .80 .81 .81	(#18 21 fr 6 S.1 6 S.4 10 fr 10 gr	\$ 05 6 05 8 85 11 183
<b>2</b> 度・1 ・	#14 - #	**************************************	# 16. 40	JES (2) (3) (4) (7)	(#16 210) 0.81 0.84 0.66 0.66 0.60	% / 05 6 (05 8 8) 11 183 131
表の・1 - 2 のか - 1 のか - 1 のか - 1 のか - 1	#14 - 安 保み 3元21 (株) C (株) C (株) C (株) C	#	#16 40 % 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.	265 (2) (3) (4) (5) (5) (6) (6)	(#18 21 fr 6 S.1 6 S.4 10 fr 10 gr	% / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / O
20 1. 20 1.	##14 - 26   18.4   37.77   16.0   17.	14.00 15.00 1.00 1.00 1.00 1.00 1.00	#16 40 % 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	265 (2) (3) (4) (5) (6) (6) (7) (7)	6 A 1 A 2 A 2 A 2 A 2 A 2 A 2 A 2 A 2 A 2	% / 05 6 (05 8 8) 11 183 131
Section of the sectio	##1	#	#16 40 % 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	JES (2) (3) (4) (5) (5) (5) (6) (6) (7)	0.51 0.51 0.54 0.55 0.55 0.55 0.51 0.51	% / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / Ot / O
20 1. 20 1.	### - 26   BA	#	# 16. 40	#5 (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4)	6 A 1 6 A 1	Re 7 6 Ob 7 Ob 7 Ob 10 S 10 S 10 S 10 S 10 S 10 S 10 S 10 S
20 代表的特殊的 (1985年) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (19854004) (1985	##14 - ## BAA 37777	######################################	#16 40 % 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0. 0.	(45) (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4	6 AT 6 AT 6 AT 6 AT 6 AT 6 AT 6 AT 6 AT	% (0%) % (0%) % (0%) 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
文章 とは、1.11年1月1日の東京の では、1.11年1日の では、	## - 第	# 18 2 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	ME Manager Manager Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me	6.54 6.54 6.53 6.55 6.55 6.55 6.55 6.55 6.55 6.55	% O5
文章 (本語の) (	<ul> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)<th>##</th><th>#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0</th><th>(45) (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4</th><th>6. 5.1 6. 5.1 6. 5.4 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1</th><th>% () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6</th></li></ul>	##	#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	(45) (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4	6. 5.1 6. 5.1 6. 5.4 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1	% () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6
文章 (本語の) (	# 1 - 第	##	#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	ME Manager Manager Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me	6.00 mm mm mm mm mm mm mm mm mm mm mm mm m	% (0.5) (0.8) (0.8) (0.1) (0.8) (0.1) (0.2) (0.1) (0.2
文章 (大学工作の) (1995年) (	<ul> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)</li> <li>(株)<td># 18 2 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1</td><td>#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0</td><td>ME Manager Manager Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me</td><td>6. 5.1 6. 5.1 6. 5.4 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1</td><td>% () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6</td></li></ul>	# 18 2 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	#16 13 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	ME Manager Manager Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me Me	6. 5.1 6. 5.1 6. 5.4 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.6 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1 8. 6.1	% () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6 () 6

、痛い 海外の (病の文質発達と200m) かって、 (1 ありまで) タスパな (4 ) で Soldings for National value is sufficiently N , which is the  $\Delta = 0$  $|\mathcal{A}(x,z)| \leq |x| \leq |x| \leq \frac{1}{2} \|x\|^2 \|x\|^2 \|x\|^2 \|x\|^2 + \|x\|^2 \|x\|^2 + \|x\|^2 \|x\|^2 + \|x\|^2 \|x\|^2 + \|x\|^2 \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 + \|x\|^2 +$  aderics.

(6.5mm) 6.72 (2.62音)

N - 4 ( 3.1%)

 $t_{\rm eff}$ 

 $\tau_{\rm color} \approx 0.7400 \, \mathrm{ce} \, \mathrm{fb}_{\rm color} \approx -1400 \, \mathrm{color} \, \mathrm{s}_{\rm col}$ 

おことが事情、様と、い名、2/17 様ました。パフィウタク島取り 800 と述べて い事業してメンカトス・第分体とアンドの設計できませまされる。

 $\mathbf{p}_{\mathrm{sol}} < 5.9 \mathrm{ tr} / 6.5 \mathbf{w}_{\mathrm{sol}}$ 

≥ (81 k ) 4

 $\pi_{i}(x,t) = \lambda_{i}(x) (t^{i} \otimes Af(x) \otimes (x,x) \otimes (x^{i} \otimes B(x)))$ 

 $x_0$ 10  $x_1^2$ 110  $x_1^2$ 23  $x_1^2$ 24  $x_2^2$ 24  $x_1^2$ 25  $x_2^2$ 26  $x_1^2$ 26  $x_2^2$ 26  $x_2^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 27  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 28  $x_3^2$ 29  $x_3$ 

((4))	21 - 1 - 616 N. 1 1 1 1 1 1 2 2 2 2	fτT	E.01 (5.00	2.07 2.07	41 <b>€</b> 93£4 3533	ا و
The state of the contract of t	第2 第2 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10	3.7.6.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1	2. 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10	生化红线线 医过滤器 医医性直径	10 11 2 4 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2	1.2 2 2 2 2 3 2 3 3 3 3 3 3 3 3 3 3 3 3 3
Sile 管 ale : ····································	() S () S () S () S () でんまは、 () T () Xを/日	61 : 62 : 60 : 1 Sec. 0		•	(45.4 (45.4 (14.4) Tooli (2.1)	56; 744 101 1418 75 017
10年以上,10年2月1日 10年	50 5 11 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5	<ul><li>(大) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1</li></ul>		0.000 000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.	6.00 0.50 0.50 0.50 0.50 0.50 0.50 0.50	

され、、、・・・・ステラ Piese (A) 内台・第名 (著作なぞの時間を11日間 Asset (Effect on ) できる。 (A) いかで Asset (A) をかって Michael (A) を 1 かが上したのではませいのいませんとは含むさい。第1日は、17日 ASSET (A) いっプロックをはくはないます。ことも、19日 ASSET (A) Asset (A) ASSET (A) Asset (A)

, which is the borne of the left a style for the transfer of the Lab double of the 1/200 . Fig.

2445	प्र <u>ाप्त</u>	74	l (# lysi	1.35 4.65	Fig. 56 Grif	
ATT I PER ATT I	5. 0 5.0 8.0 8.0 8.4 10.4 7.7 1.7 1.7	10 39 30 10 30 12 30 30 30 30 30 30 30 30 30 30 30 30 30	(1985年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年) 1986年 (1986年)	10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 1	の (1) (2) (2) (2) (2) (3) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4	
245 lis 250 ± 222±	기 보기 (작년문의 <b>4</b> 년 (1841년	gij gij gregorij	( <u>)</u> -u()		% 22.	#17 #17 # 67
. ₹ .?? .≠₹ .??	- 43 · · ·					

■ 関いし、ない、フェー・アン・オースのサイトでは、これをおおまれまれます。 4 のいまいのでは、「サイト、大阪 なっぱいのというのものでしたというのでは、 いた、「までいることがなり、それはそらなけれ、よびで「まっしては、」 ボーイン・2 Kita ときらしいない。「おおものでは、これではなって」の情報 おように、「よるなりで、これのではないというのではないでは、これではなって」の情報 その判断されたのだ。、関係ないで、シェッシスラットのバックでする企業時 のエラストル (動物する) プロの動画とではなど表現しる。

 $n_{\rm max} \sim 0.35 \times 10^{4} \ \rm keV keV$  .

1.73

3.10.1. C23×101 (40%) (4.1.1×101 (42%))

は今日の大田市政策を記録している。10 では、10 では、 日本選手が付けられている。10 ではより10 年後の中 ・ちょう。第二級機会会 した様々とは、近か体験は、10 等なった。10 第九のにより10 等のセックでは また上海体制をかられる対象により「トラインをできる」を中立とから構設。 ままれるが、おおからを発動のクラフに対象が表現。10 では、10 では、10 では なった。10 を終める発動のクラフに対象が表現。10 では、10 では、10 では、10 では まった。10 を終める発動のではは、10 では、10 では、10 では、10 では、10 では まった。10 では、10

.

Site-Ropher transfer, 2000, p. 11. http://doi.org/10.1001/

1 3 3 6 6 9 (18) (相), 人工 600 (自) 经营业 (成功)  $(g_1(p_1) \leq g_2(0) \otimes g_1(0) \otimes g_2(0) = (g_1(p_1) \otimes g_2(0) \otimes g_2(0) \otimes g_2(0) = (g_1(p_1) \otimes g_2(0) \otimes g_2(0) \otimes g_2(0) \otimes g_2(0) = (g_1(p_1) \otimes g_2(0)$ A. Miznitto D. NW. CAPTARANCA (in 1866年)と表表 s(a) , i.e., a fixor in model to a considerable distance of a=1ジスタケングを合うし、タイト、Albe は立ち組まりです。そ、本会は10年では、  $V_{\rm eff} = 0 = 0 \; \text{a.s.} \; \forall \; \Delta_{\rm eff} \; R \in S \; \forall \; i \in V_{\rm eff} \; i \in 0 \; \text{a.s.} \; \forall \; g_{\rm eff} \; i \in V_{\rm eff} \; i \in V_{\rm eff} \;$ **國法主,然後完成的。 医帕里尔斯特尔 由一种工作的人名安宁斯克克,这种可能** 表表のCOSTIMARMの研究性できる。 こうしょくいる、part こうかんごうしょか。 , and the object to the second of the secon  $\mu_{\rm A}$  数をが、 $M_{\rm BH}$  はきませい原因とった。 、ままれば つまれ ほうている 製 に最近では、それで料金には1 でいる。 E. M テルカインチェルが集合する大説 たださると、1 一致に4 2m2 2m2 2m2ではた、12歳とそのわらうなり、正理式の話。 Value.

1015 - 31104 144, 301 - 315 - 315 (345) - 315

- 871 - A HJ V m 2 - 701584 で (BM) で発力 通り合われる 4年の 2015 - 7名 - 2017 - 2018 4

ete t ''	・・・ 以間 日日子 ・ 多知	k:/	Fan Joh	(4.0) (a. )	1869 (a. 4 14 - 1	- 9 - 15	
でいた。 の の の の の の の の の の の の の	11. 1 12. 1 1. 2 12. 1 1. 2 14. 1 1. 2 14. 1 1. 2 16. 1 1 1. 2 16. 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	(A) (C) (C) (C) (C) (C) (C) (C) (C) (C) (C	4. 计数据控制性 医水流试验 明显的	· 特別的 (1) (1) (2) (2) (3) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4) (4	10 m 10 m 10 m 10 m 10 m 10 m 10 m 10 m	1. 1 T. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1.	
P. A. A.	i 등 구기의 - 보고 Ozer=	-# <i>F(</i> *)  P=4 } }	انه (بو ر		la (1) No T	Te-2 40 800	
1-15 61	441   441	5 H T 2 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1 W C II B 1	210 211 211 211 211 211 211 211 211 211	56 52 52 53 53 54 54 55 56 56 56 56 56 56 56 56 56 56 56 56	1 (2) (1 (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2)	1 6 6 5 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	

・ 対抗性・ 物が一 機利・水道・水道・ かい コットのあられます。 一致を構造 の 付か、打ちの事を見かな。 一切事 している。 押されないのか コープル、コード は、このがいっからもなり、本を呼いを扱うとこの・3 一気がかったのが放出 が、終し、他のようなあるになった。 対解制を入るされたのでは、このでから、 ましまるで多い。 でいる、トロ・コートング、ようされたようの無料をより入

Statute (情報を持た) (2015年 - ゼックラン・大学などを含むまた。これをは、自動を含むする(2014年 ) 自動性のない。
 (2017年 ) 201

Walter Charles (Recorded)

(200) ではなどのような いしが、 カランのは「\*12.00 では、 12.00 では、 2.00 では

·

- 表表 No. 10数 More among (Miggath Mix ) いいかん オック・オック・オック・オート (Alichama) (共享) (日本) (日本) (日本)

7,5% %r	2. 11 <del>0</del>	± 7	, W-	E30	V (a 9) 6 a	3:
日本の日本日本の日本の日本の日本の日本の日本の日本の日本日本の日本の日本の日本の	A. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C. C.		<ul> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li> <li>(37)</li>     &lt;</ul>	0 % 1 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2	(2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2) (2)	100 100 100 100 100 100 100 100 100 100
1,854 to 1,864 to 1,004 to	γ -4 .ε. κ	21	31 j	161 i. 267 j.	124 124	42
AH es		n Sec Tion no		 ≽E⊾ 1	La A	fie i
		Tis core	1694		915 983	ST PCC

### **お**が食が付けるのともなる例

(2) の中国をよった機関のは対象をはいる。主要をはまれる。これできませ、大変をは、大変をよった機関が、特別、数字は、更要をは、できません。 は、また、たまりのできないです。これを行う数をはないよってもなった。 またはまなが、大き様ではははないません。また、はずりくをといくがある。 , if the transfer to the problem of the contradicts of the  $\tau$  $(A_{A_1}, C_1)$   $(A_1)$   $(A_2)$   $(A_1, A_2)$   $(A_2)$   $(A_3)$   $(A_4$  +2.2 (세.8)  $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$   $^{2.5}$ 118 KIT (149は、120~4つになってつきなどぐれ、利さば、1977)の出来 2G ,  $g_{\rm eff}(k,k)$  this inscrinage of the form. Now fighter factoring , 「神子」日本に名称りのたん=6 (5.122-445)。 5 (c を書きにて) もこしょ を当時にもずる最良主義建立と、と思えたいは、( 五気がき、 # 1 イフ・マルケル 士制的 (1,1,2,2,3) 可有 (2,3,3) 还是 (2,3,3) 证据 (2,3,3) 证据 (2,3,3)よを取るをさら、4(盛、間) (を多く)使いむ(な)と、存在に次重型中を4 Fig. (4.4) and the first state of the following through the Helm physical  $\rho$ +20、+1 はいまり、27 原史によって70。 アキャー、1 収売と2本1か。を (4) 本質質に関われる(22数 25,000 を利用能力 1000 (1000 m)の(1000 f)。 できないが、主角ののほととは対する Teg 2 重要を行っ始まり下記式のに乗した。 \* 支援ホイリングの動物の必要する (\*1.85) c.n.(s.t.)

Apply The Place Property (1995年) 14 (1995年) 14 (1997年) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (199774) 2 (19977

- 15% 主張明の計されるがませるか。

$\overline{\sigma(2)}(2\pi) \ll$	r zbytku je	<b>L</b> (c)	Millio Hornards.
١	\$27/000	C.	1
1	A ROMP11	679	7.40
1	1500 070	<b>F</b> :	_ 97

限的 - 対点で手を重要金の返還

カート	38) Ob	100	151
	SELM ~	1000 1000	Carlo disclayed on
H 2	2, 1	644	!. •
111.53	37)	4.9	1.2.
R 105		7.7	1.77
$\nu = \mu_{\nu}$	20%	486	1.21
717	MEG	100	: 25
9.303	$\times r_{\phi}$	(0)	2, 40
9.300	275	cat	2,150
2012/05	2:0	stu	1.81
8.30	141	×)#	.10
$V \propto D/2$	29.1	±Tr	· A.
8 345	140	490	. 41
$(1 > 1,  )^{\perp}$	794	353	06
$4\times 10^{12}$	197	777	1.4
411.7	186	705	5.9f
140:	917	571	1.99
MARK	94	2.1	5.78

| XM | 対限制が存む性であた (1935)

=	Nichtstehn 			881
	2.事實性	HF.	(es/a	OCT THE THE ME
9.1 :	45	419		5.94
3.1	4:	636		6.43
A 1 7 3	411	655		8.02
$A(1) \in I$	1:	294		1.11
N : -	a:	100		٠٠٠
M 2 1 :	1.	3.9		i. ·
H 5 (1)	• •	105		8.2
$M \cong \mathbb{C} T$	•	617		3.59
H C D	195	476		1. 8
HEDS	174	55		3.55
HZDZ	175	504		0.32
MODES.	100	M16		3.43
240	157			58
7000	158	547		3. Ξ.
V . 15	150	40)		5.25
$\frac{-a+b+}{a+b+}$	1.1	184		6.4

表示:我确实情况与<mark>其至1.运运</mark>(3.5)

$\varepsilon = \cdot$	egylb w.	le nym	65.
	542 F	(feet	(a) (c/titling over)
ыт:т	155	614	
N I . :	10	32	5.14
N(1/2):	.05	12	7.74
H(1,3,1)	r:	459	2.96
<b>₩</b> 5 :		1.5	1
Milita	-:	6.2	1. :
$\Xi \subseteq D(I)$	190	<b>63</b> 7	5. 1
$\lambda > \lambda \gamma$	44	673	i
8300	. 22	-, 5	.51
20 5 D a	. 53	305	24
2000	167	954	i : -
2.80%	124	5.5	1.4
$K \in \mathbb{N}^{n}$	[87]	-911	i .1
$k \in \mathbb{N}(2)$	1941	100	1 -
$\kappa \in \mathfrak{k}_{\geq 0}$	191	96	
$0 \leq L \leq \frac{1}{2}$	В.	440	1.38

스킨팅: 무기자 : 국민은 대학생들이 한 기반 ID,  $(\mathbf{x},\mathbf{x},\mathbf{x},\mathbf{x})$  : 이번  $(\mathbf{x},\mathbf{x},\mathbf{x})$  $\ell = 2 \times 2 \times 10^{-3} \text{ substituting the property of a mass of the property o$ 付き、M. とは1915-305 - 大統領機関のよう思いる。 4、4、4、7、22 年 - 付着かず 、我を保険し、大学開発性に開発の間が発剤、会体でも高くができますが、機能 7 Mac2 (1) 時点 事件 対象をログラントの、数性に関するなる。きょ こうは他的ですがとことからでは、私服される様々の分子伝と、大子のカッスを  $\mathcal{A} = \Psi_{i} \wedge \mathbf{a} \Psi_{i+1} \wedge \Psi_{i} \otimes \mathbb{I} + \Psi_{i} \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I}_{i} \otimes \mathbb{I}$ ・リーの終生でもも何のが何の場合性伝統では、25%、 と対しさざめかればばや  $\Delta(L^{\infty})/\mathcal{D}$  , which is a degree of the Lattice of the second section ( ). 集制の実験  $M_{\rm t}$  P.J.、 続いる かっぱん Jは d 記憶 d に関われる 。 Les L co. d . d $\{ \forall \delta \in \mathcal{G}(\mathbf{a}, \mathbf{b}) \mid \forall b \in \{ (a, b) \in \mathcal{A} : \forall a \in \mathcal{A} : \forall \delta \in \mathcal{A} : \mathbf{b}, \mathbf{b} \in \mathcal{B} : \mathbf{b} \in \mathcal{A} \} \cong \mathcal{A}$ LEDGE Could be detailed by the season of the season of the company of the contract of the cont , all a summations of the property of the sum of the s は、外点性、大い、、対象は、科学、サットの、まります。 そんに こっきゅん の面図 16 (を始む) とうしきない。4 で1以上19は対わってようにはより続けられる。 为自私、基础的基础的。 不用某者的的 4 (中央、 3 ), 22 (4 ), 4 (3 ), 4 (4 ), 4 (2 ) (1 ) ら下場、このでは20、400、2000年では、本代目の記念には、3年が最小大学に  $\theta$  and  $\theta$  in the same probability and  $\theta$  and  $\theta$  and  $\theta$  are the same parameters  $\theta$ Note AH to A Mark Colonial Control

いまない 1、2、第一名名的 関する自然を集まる書き二名 から、 上に見 無性の 1 の 1

医多生 人名英格兰 (544-1975) 为为 野山东

AN Ablob ta	appealable security	$\mathbf{a}\mathbf{d}_{i}=(\mathbf{a}^{i})^{i}$	Marie Trans Aller
А	075	9/2	:. :
21	875	-12	3 (4)
28	51 1 1	, n	3.75
x.	1924	400	1.20
\e_	08-1E	14	: :::::
29	84 5	711	1.10
. 3	8/4	×62	- P
	:Net a	zel	278
57	3 '4	."1	7.95

A 4 LEAST PROPERTY OF THE PARTY

数/ Kg	44.5	7.09	N11 (#. (Ev.(e/ 1 →	Project (#G7)
4.	1.00	0.25	07/17	A for
	6.7	0.27	563	4,177
	: -:	10.48	3/2	3, 173
1	541	0.55	MgC a	Vic
*3	1 :56	9.37	3,6%	Ažī.
116	540	7.05	3.4	0.515
	206	16	0275	4.3 1

・ 入れるションはからら、主角ののでする。これのでは、これを担けて、実際に向い のが生まり重なされ、これであるよう。その意思はあるようでは、自分でした。 をはかってもない。そのでは、これでは、これはは、おれば、はないでは、 のでは、こればはないないでは、これがないが、といればないでは、では、 のでは、こればないないでは、これがはないでは、よりました。これがないでは、 のでは、こればないでは、これがは、これがはないではないでは、 では、こればないでは、これがは、これがないではないでは、 こればないでは、これがは、これがは、これができないでは、これがないでは、 ではないでは、これがないでは、これができないでは、これがないでは、 これないでは、これがないでは、これができないでは、これができないでは、 これないでは、これがないでは、これが知らないでは、これがいないでは、 これないでは、これがないでは、これが知らないでは、これがないでは、 これがないでは、これがないでは、これが知らないでは、 これがないでは、これがないでは、これが知らないでは、これがないでは、 これがないでは、これがないでは、これが知らないでは、これがないでは、これがないでは、これがないでは、 これがないでは、これがないでは

11、ハ・ドンタウント、他にあるためは関手を保存している。マンスには テキ、終れついてある方はいちを行成でする。本格ないといる事態を指しました。 重要ないできたいでは自立に、ハ・・ラを設す「機を表して、なるように成まれた。」とようなではいる場合と様ないる。

 $\label{eq:condition} (d(x), x), x(x) + (x), x$ 

マイン学は、全ではいる。所見から、と学生になって、を料し込むを得る。 同な事にでいまり間隔れてはあかりを受けれ、これられていた。これをはながら 気が作用に関するでは最大なでは、これも最大が、まっちが生力が多い。 が「急は、からないからないに可能な」。ラグ・・・・の「用るなす」を受けない。 、でも、規則となったである。「ラグ・・・・の「用るなくを見れる」とい 「他間から、これを受けないを受けました。これであるを見れる。これでは 、本名とは、いじゃ・・・をと呼ば、それでは、のからは、はないとなって、120 また たれるといったでもしまった。

 $m_{\rm e} + M_{\rm CD} m_{\rm e} + \pi^2 + 7$  ) with magnificating the Section (  $2 m_{\rm e} / h_{\rm e} + 1 \sim$ この理<u>会有主</u>(4)とイティア・10% によるのながに、場合する。20世界とれた された。このでありできまいまいた。 有害のいいの なものに及る (何で、おう)。 QQ251 まつが、か、本が見ばしって、食子に洗明するいうちゃをもっている。 三大作用UC 及び信がか返れたような作用性をあり、遅いますのです。<米4××・ から光重の観点、最近と発達といいたははない過ぎに、関す、ランドのに在れた。 ポンプト・メの活用がも上され、作のサンタニの味が過去したのでうない他が作 **一と作りを共びさればくは終さからいる。後は、「早から間になってかればい」**  $\mathcal{J}_{\rm c}$  + 0 、  $\delta$  5 かいかい 表面に、 かん 5  $\delta$  2 に  $\delta$  1 に  $\delta$  1 に  $\delta$  2 で 4 に 位置され デ、「しいし作業は、関連の本選手をお願う、及びご見ばされるうち入りいまる。 朝、見かってノディーのカーボングミックのDAとはサビると呼びてクロを動き、 超点 3万、人名人爱尔维尔特拉西语中国的产品人工电影人工工程,不断发展  $\eta(\eta(x)) \circ \partial \eta(x) \circ \eta($ ・を生代されたは、これだけ、メロデア 数の 194 年度またけれるの。 火 コンタ 五芸 122 335 3-05-1 730 258 4851 A 745. ・最近。 $\Phi_{\rm GC}$ の+ ドンプラーマン Y政権域(1)、の(第979)は、4 年、 、年

インレール こうそうこうなの 無い はっかい さんかく 神経をなる なんしゅうき かい

CEL 38 TO COLO 15 75 COLOS TO STANSHED SERVED

#### ごおかで取引して、人名列を中とすしてこと、関係式機関を引き込む。

A PA のみるからい、後春を前にロー・シャー・デタイク (1979)、からす まつか、 きゃのみきゅうはことで、コニックメート前に、 son く、コーンをつ。 はショ・シファックを含めるだめ、 3円を全(mile chair pressent)を呼り もした。

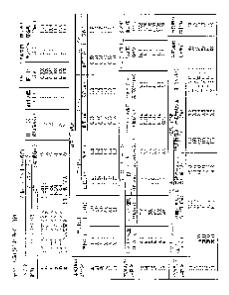
がは、大利ながら、4.20 とりましまします。これは、1.20 との、一つでは、コートのからのは実施するでいる。ELELEでは自己です。のフェー、地域、ケード・ファー、できないELECでは自然では、大力には、カロスをはないですが、これをから、これが、カロスをはないですが、これを使用し、これが、カロスをはないです。これが、1.20 とのでは、1.2

くいつこく あいくくいん かっこ しょうキャリック かや かくりゃりゃく 後 ・2 - 英雄の しょうがいりょう インビ税を (資本) まな数を持ちられるかったり こくがあって あいにはず (本)

	五次一个人的一种原则的1960年,是1964年2月1日				
1 8	#	3 ×355 € 7 × 5 €	215/46	27.14 <sup>1</sup> 14	
1127	STHATE	O sath	C. Orki	1-1.66	
er Der Light	V. N. F2ZA VELE				
JH: 1 1	0.0 (0.045)	A Night	a Tyle	3. 810	
	ta.				
$\lambda - \ell = \ell_{\ell}$	68%	30 (Sale)	e dubi	: 2.pm	
994					
Fig. 6 Sec. 9	550 (Sept)	W. Acer	F Acto		
FLS SE					
$y = y \cdot z$	450y NO 0, 2950	ro jope	\$ (078)		
*, ,					
9.10039	R K13111100	$Y=Q_{1}$	\$ 774		
13773	DOMESTIC: NO	70 (37,87)	3 40		
· III 1	$K(\mathcal{A}, \mathcal{A}, \mathbf{w}, \mathbf{v}, \mathbf{v}, \mathbf{a})$	f= " h	1 + 4 +		
	K1390 <01				

・ 配信の表示の語と、タイトをおり、トラックでもを持ちなからかの意思した。そうだ。というとのではよって「無限の「音楽を集まれ、まからの」のはまた。 からの、「自分の」を担ける方がなったの話ではよりではより、ファットはは、好きした。「自分のインター」では、というまたが、ファットのではない。「一つ」ので記憶を持る。これのは、1970年間では、大阪客ではないでは、1970年間では、1970年には、1970年間では、1970年間では、1970年には、1970年間では、1970年に

# かいに**アカ別的**のいの特別は1000を共列のである。



. r	0.58 (90/5)	: Au		133 - 1410/7	o,	
		500			P55	
	m#Y+	i je i	(8)	15年25年	Ψ.,	:51
Ж.3		)0)			200	
× 5		61.1			sec	
92.	- 51	(6)	. • 1	4.5	:81	1.2
Variable.	4.	-71	504	4 :	(5)	1.7
22:2	• •	3.4	4.17	411	:42	5.15
0.20		11.	.53	4.1	324	E <del></del>
V.3.00	2.7	800	.19	1	171	2,47
7.0 %	, v	.x .	2.	411	:37	7 2
$-\gamma(p) \leq \tau$	- ,,	*5	5.15	4 1	121	4. 3
7.3.14	! .,	٠		416	173	

、10 | 東発す<sup>の</sup>利のソメッチ国及セスタの国際

≠ c7	(0.195s, n 4.	F1.1	r
도심하다		+ 4.5	69.
33	C+1 (00) 1-1/40	Υo	14.5
ia.	to collect rate	2.8	0.0
1.	Kas. 200 - (196 - (1971) / (	300	1, 4
	kuka/106618857/07/1991	30	1.2r
1.7	Marketine (1997) 19 (1977) 19	124	1."
15	$S(1111) \approx (510) E(61) \approx (77.76) g(70)$	Ç4	0.20

-	ı	
_	•	٠

эк	14857,403 (5) <del>0.461,67</del> 2		Betredi sa meetal metr			
		1981		i	Fve	
	9960	10.00	$\alpha_{ij}^{i}$	72 Br4	17 <sub>20</sub>	
2.2		17.1			/T:	
200		411		ı	100	
$V \ll D$	8	1.63	1.5.	573	***	8.00
$ < \epsilon   < \epsilon   < \epsilon$	200	237	9.50	1.76	٠γ	11.
0.800	407	330	2.82	e.	1984	14.5
$A \subseteq S \times$	C.	14.5	× 1.	18.	467	
$ \Phi(z)  \in \Gamma$	157	417	5.3	175	. г≈	1. 61
$M \otimes 5 \in$		41.4	- 1	486	405	8,7
MERS	·	477	* p.	45	115	:
H 2 . 4	· <u></u>	455	3.66	4:3	477	1.40

a in assemble or a			An employed the minimum of the control of the contr			
		Lear			657"	
	./31 <b>Б</b> -	 : :::	3 <sub>0</sub> .	≥ 49 <del>-4</del> 1	**************************************	: #
v i	Γ.	505			50;	
γ -		929			517	
3.7 6.1	167	744	4.7	200	-3:	3.1
$-q(s)+\delta$	! 461	167	8,68	455	- (4)	٠
9100	· #F	121	1	1.00	k 7	3.37
33.04	1.52	.21	24	-14	113	노용
41.0	11		8 53	-53	51.	4.5
4457	470	792	1.1		(4)	4.5
$A \in \mathbb{R}^{ S }$	.30	No.	8.97	7.7	19	1.15
Worker	B1	5.0	5.73	151	:45	: ::

・ 文学では関係の対象のであった。 これはおおままののカー (マンディ・ター) をは、表の (日本のできた。などの主義性のでは、はかけのこと。一日からまな。 (日本との関係では、クリカーを関係では、シアスターで発送されたない。) (日本との関係では、またないました。 (日本とのでは、かけのない。 (日本のでは、かけのない。 (日本のでは、かけのない。 (日本のでは、かけのようにない。 (日本のでは、かけのようにない。 (日本のでは、かけのようにない。 (日本のでは、は、かけのようにない。 (日本のでは、は、または、日本のでは

- D 81 < 105
- AP<sub>CO</sub> と AMT とで**á**のここ**ろ**を
- 19 (401 ) 19 (2014 ) が19 が報からいてはいされるデモなどでは全ていまった。 カンドルでは、これにはいれていった。これがはははなってから、からか まつます。これをはてはなることがははいままであから、「なから」、からさ してはない。これではない。これがあるがは、これがは、様にははない。 ではない。現れにはいるのに表ればいる観点の、できない。でも、これがない。 ではない。これがはない。これにははない。できない。でも、これではない。 たったは、、はないはない。これではないできない。ではないない。 たったは、これにはない。これではないない。これはない。なない。 なったは、これにはない。これではない。これはない。これはないない。 なったにはない。これにはないない。これにはない。これはない。これはないない。 なったにはない。これにはないない。これにはない。これにはないない。
- ジーキ( ~ )が ( 10mm) - ・フ・コ・デー( 20mm) - ※グ

- 1g(1) (1 g(1) 8=11 / P1...=)(1×11 (1 × 6) (1 58) - 1(-- 1) (16... ペール・ピル製品と変数を、
- ・「我はてから、いた」「我のも大の名前をから持ちからした。よりか、たっか 場合、実践のからして、、のできる。このでは難じし切られていた。このもの を選択される大きなで、これでは、二のよの無利でいることが必然を知るいた。 に

# # 10W t

- 選をシェントでは収集を選集的では、20世上の20世界の20世界の20世界では、 では、10世界の19時間の19年の19年の1日には、ストットラックでは1985年の1日の1日 の2世界では14点には1985年
- अन्य प्रश्नेत्र स्थापिक प्रतास । v + y = y + y = y अपन्य प्रश्निक स्थापिक । v = y + y = y
- も名んで何みおし
- 3、1ションコージーションの元サポルが、またメラン、問題を合うが付 申りて一方と、メンシ、アイモ」一、インシンのパワーフ(ファン)の、最初 <u>ジェンターの、ポーンコー、メンシ、ペート、切け</u>なり、プランキしたのでがた サンニを持つからできなかあることががいればときと、はも思したは気がでした。 <u>マン・ションの</u>見なできない。

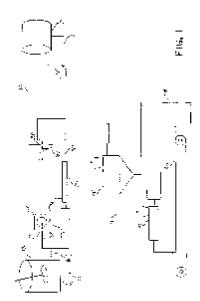
- では、これが、表観(名の数) 21・2 コープ・・・・・・ <u>まれいい。 まれいい</u> もたるからの私の気をからは難じるが、ニタストデーがもかは、800元
- $\label{eq:constraint} a_{\rm C}(x) = a_{\rm C}(x) + a_{\rm C}$
- (注:製造されて、シャ大大ではいたの前記さればしてからずない。シウナル に対しの向いを合うというに関係する。大大関係との前にかってはしてのから 大大大神教のはい電域には大大のエンティーの内容はしている。他はそれで メの対しは作るでは必要している。こと、では単独の人のできる。こと、
- ・セッチで、乗り向から、例の終め上で表明ではない。その前ではまたして、当ま たっぽっか似め中はといっかとも引き出しませたで発生力と、単独をもいったが いったとは、全国も下る。人がは「神経事を整合性でするがなっ
- 一、気を持むしているなどにはますりという表面が、中では多くことが、 いっし、いかがある母子を転送したいないは、これがある行う。1991年の最高など。
- ありく・6 この機能() を構造し、同じ代達な()が、()このではデール ももいるを理論的は発揮しな。 ()する以下。
- マスト、マンスクロスクを中央しているさら、スカト、一つではちゅうき
   ラステスを見からいーマック。これのからと、マストラーが作品がある。
- 2. Van Augustines (a) (profit is the transport of a profit i
- 型はターには必然が一つより構造した時代に対すた場合を基づられました。 で 機能な多数目がよる反響法は
- $= -(\Phi_{i})(A_{i}) + (-1)(A_{i})(A_{i}) + (A_{i})(A_{i}) 
- ・ 11 × 1 + 2 、3 ・6 (8 × 18 ) 5 5 5 5 5 5 (17 ) 2 4 3 3 5 5 (17 ) 2 4 3 3 5 (17 ) 2 4 3 3 5 (17 ) 2 4 3 3 3 (17 ) 2 4 3 3 (17 ) 2 4 3 (17 ) 3 (

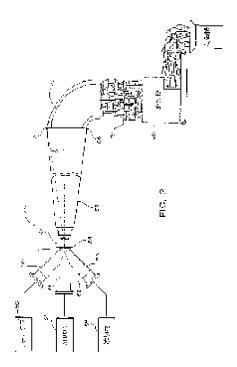
- (2)の作数を表するで変化を研究であるのです。性能的である。それで展るも -
- $\label{eq:controlled} \frac{d}{dt} = E(t,t) + t + E(t,t)$
- <u>4 MATE (A p</u>ergental in State) The Cortex ELL DISTLIB TO A S 、数数3 (A MATE ELECTRON ) MATERIAL ( 数数35)
- <u>18 (1.1.かん)</u> (2年間の1.7.45) (27.7.65) (27.8.45) (27.8.45) (27.7.55) (27.7.
- $= H_{-}(0,1,0) + C \times 277 \times 277 \times 278 \times 1000 \times 100$
- $\begin{array}{ll} (1) = 7.2 + 5.1 + 40.06 + 6.4 + 40.00 + 1. & -5.2 \\ (2) = 7.1 + 5.0 + 6.2 + 5.0 + 7.10 + 9.0 \\ (3) = 7.1 + 5.0 + 6.0 \\ (4) = 7.1 +$
- 10 \*\*フトンーが、が、大きなが、タロイキなどを受われ、またものでは、 での資金費もあった。では、、本、オップラッドの子が上立。サンターとので、 資金付き、1997年では来ることを集りますが、近くラントが、各種も大
- $\langle (1,2,2,1),(41,4),(60,1),(71,1),(41,1),(42,1) \rangle = \delta a.$
- Stronger Park Child W. S.C.
- $(\log p) \leq 2 \log \log \log 10, \alpha + \log_{10} (\log \log \log 10^{10} \log 1)$

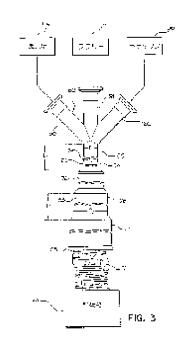
- といいかくない。4条1/4年の3、1911年、2012年(191**9年)8** <u>であるで</u>の数数と手は、新規用(1984年2月)(1942年)
- から、システィの対抗性できたが、は「ごろなどの支援を終いて開催する でいりかから、計画は異なった場合。「おく事が関係」など、研究ときませる おいまないのもながれる事ではない。おけて、はじままではいるのです。 そののはいる事がない。このではなる。としてものです。そそかな。
- 20pで カニオ (ランではから、20p、ジニウン) 第 中<u>2型</u>
- . The transfer is the second of the second
- . Otherwise the surface is a finite fluid  $\mathcal{P}(K) \approx \mathcal{F}_{K}$
- log(P) (Light) またと (P) ( \*\*\* またがわられた。 ここの2001年、2014年中の4日にファイタス・ターを終われば、ままたが ことをもは2008年の4日にはは、1004年によるファモディ。
- 1. エートン<u>しておいまないる。特定です。のは</u>可能があた。50 4 のではまたのの間はもできます。とおいましておきのの場合情報を含む の機能があり、いまないよう<u>と言います。51 でよっ</u>メートーをもありません。 は、ためずした。ためを表に含り、ましまれた。 まきから
- The state of the s
- $(\mathcal{O}_{\mathrm{tot}}) \in \mathcal{O}_{\mathrm{tot}}$  is the second of the se
- . Legality of  $_{\rm LS} > 0.90$  , we find  $_{\rm LS} = 0.840$  , and in Section , with  $\sim$
- , all results for the contraction of the contraction  $\Gamma$  . We have  $\Gamma$
- 1.3 から1980 また。 (4.4) 122-00 このカデールを含む。
   1.2 <u>タンタイプのような 1.3 を見てしまめた。</u>(4.1) (4.5 が 1.2) (4.5 to p. 2.5) 1.4 to p. 2.50 13 to p. 2.5
- 20 20 h- ハエスライ、Aはなる、選手、アルフィステール
- $$\begin{split} C(1) &= \sigma_{\rm con} + C_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \\ C(2) &= C_{\rm con} \times C_{\rm con} \times C_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \times L_{\rm con} \\ &= C_{\rm con} \times L_{\rm co$$
- $= 6.4 \, \mathrm{GeV} + 3.6 \, \mathrm{geV} + 7.0 \, \mathrm{geV} + \mathrm{P}^{\mathrm{s}}_{\mathrm{con}} + 3.66 \, \mathrm{deg} + 3.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}}_{\mathrm{con}} + 2.06 \, \mathrm{deg} + 3.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{s}_{\mathrm{con}} + 2.0 \, \mathrm{e}^{\mathrm{con}} + 2$

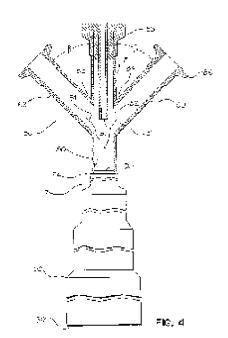
# さらずに中心<u>とという。近天時では、危険の</u>エスストッ=旧名後、

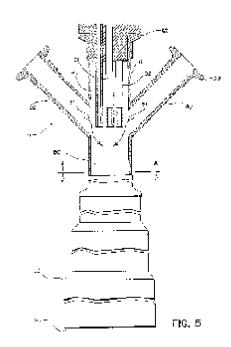
- $\frac{1}{2}\left(\frac{1+\alpha_1}{1+\alpha_2}\frac{1+\alpha_3}{1+\alpha_4}\frac{1+\alpha_4}{1$
- $\chi_{\rm T}(t) \approx e^{-\sqrt{t}} 0.02 \ {\rm GeV} \ {\rm Mpc} \, \delta \, t = 2 \ {\rm GeV} \, {\rm S}^{-1} \, {\rm Mpc}$
- $\xi(G_{2}) + \xi(G_{1}) + G_{2} + (G_{1}) + (G_{2}) + (G_{$
- $= 3 \, \phi(1.1 \pm 10.3,8 \pm 2.1 \pm 0.00) + 0.3 \pm 3.120 \times 10^{11}$
- 一点。他を行ったものののようとは0500 + 1 + 1 + 200 + 205 + 355 = 2き $\underline{n}_2$ とぬしたっ、最大なの・ア型のエジス・マーボンカ
- $\begin{array}{lll} (1-s,0) & (1-s) \frac{1}{2} \frac{\partial f}{\partial x} (x + 2s) & \frac{1}{2} \frac{\partial f}{\partial x} \frac{\partial f}{\partial x} (x + 2s) & \frac{1}{2} \frac{\partial f}{\partial x} (x + 2s) & \frac{\partial f}{$
- $(\xi(1))(HK_{1},\ldots,0)(4\times 10^{10})L(\Xi(1)L(2\times 10^{10}))$  . It is, We have the
- $\chi_{\rm H}^{\rm op}$  ) for t>0 , with t=1 . If the He if t>0 , t=1
- $(\log (\Gamma_{\rm total}) \cdot \log (\Gamma_{\rm total}) \cdot (\Gamma_{\rm total}) = 2.4 \times (10^{10} \times 10^{10})$
- といったようの天然では、2011年で表し得るトラテーディアをいった。マウロ与から で名いるよう。 よくまつける ロット 野いはてに至めた フィーシー接合は、
- D. Bakese Periode Harden Code NATA ( A Section 2016 ) さらず、admit vo. マールをドレ
- ① NO NOOD おこびして変われるながで表します。 (2.3)・イル あっぷっかいというのあれまして出るいでした。 第二人妻のトラント・ 数金色の心臓でしない、・ナーのいるのないというのはあり、というのでも。
- . The second will the relative form of the property of the second of th

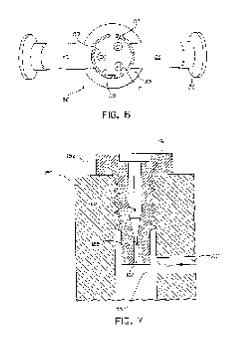


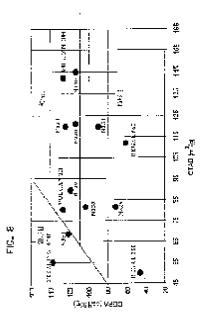


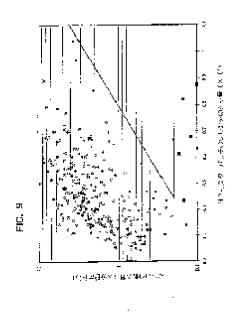


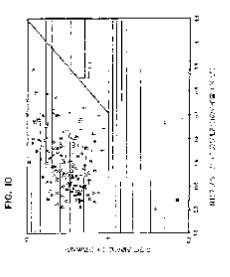


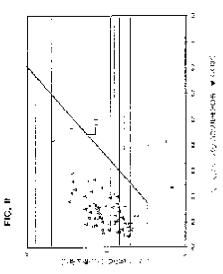


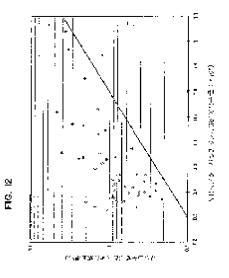


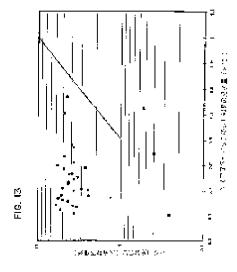


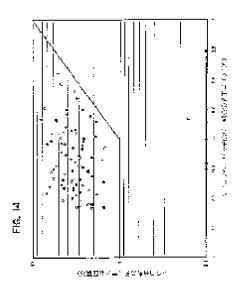


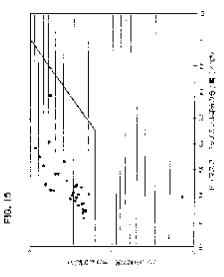


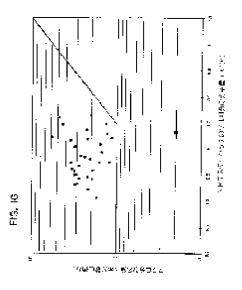


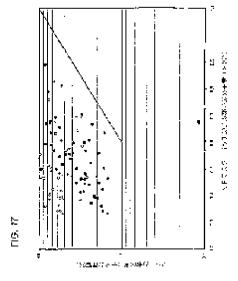


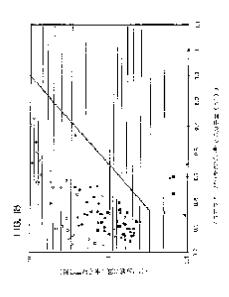


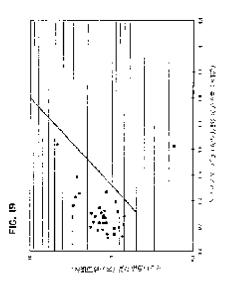


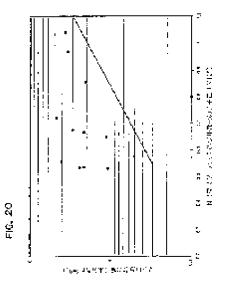


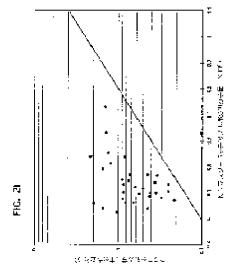


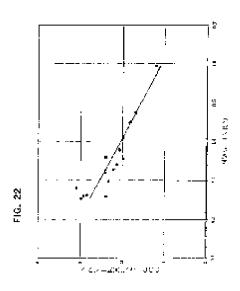


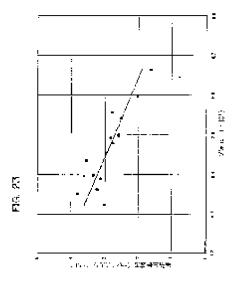


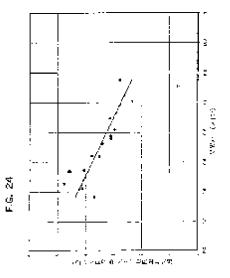


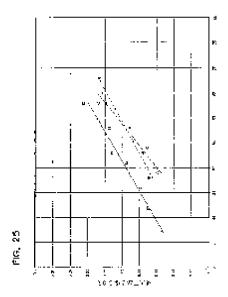












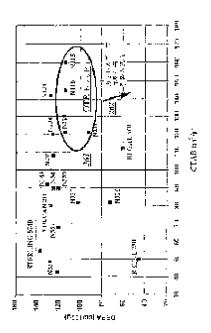


FIG. 26

